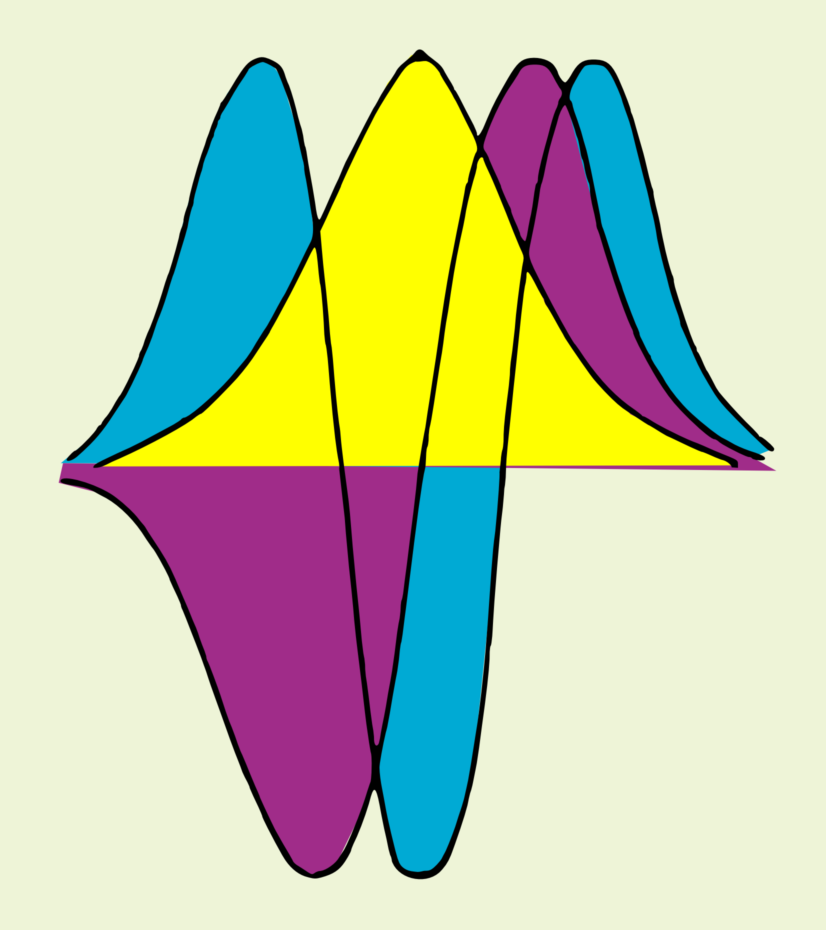
N. Karlov

LEÇONS D'ÉLECTRONIQUE QUANTIQUE



Éditions Mir Moscou

Н. В. КАРЛОВ

ЛЕКЦИИ ПО КВАНТОВОЙ ЭЛЕКТРОНИКЕ

ИЗДАТЕЛЬСТВО «НАУКА»
МОСКВА

N. KARLOV

LEÇONS D'ÉLECTRONIQUE QUANTIQUE



ÉDITIONS MIR MOSCOU

Traduit du russe
par SERGUEÏ MEDVÉDEV

На французском языке

Imprimé en Union Soviétique

ISBN 5-03-000185-9

AVANT-PROPOS

Ce livre est l'exposé du cours des fondements de l'électronique quantique que l'auteur a conçu à l'usage des élèves de l'Institut de Physique technique de Moscou.

Une longue pratique de l'enseignement de l'électronique quantique nous a persuadés que dans ce cours devaient être exposées sous une forme concise aussi bien les idées physiques sur lesquelles se fonde cette discipline que la description des principes de fonctionnement des dispositifs les plus représentatifs de ce nouveau domaine technique. Notre objectif est de mettre à la disposition des élèves des instituts de physique, des ingénieurs physiciens et radioélectriciens, qui se proposent de participer aux recherches et aux applications des techniques lasers, le minimum de connaissances indispensables en électronique quantique. Nous sommes parfaitement conscients de ce que l'objectif fixé ne peut être actuellement traité dans toute sa généralité. L'auteur en était donc réduit à se fonder sur sa propre expérience des recherches qu'il mène depuis de nombreuses années dans un laboratoire de physique générale dont la thématique se fonde sur l'utilisation des rayonnements lasers. Cette approche ne pouvait ne pas conférer à ce livre un caractère quelque peu restreint.

Dans la première partie du cours on expose les fondements physiques de l'électronique quantique se réduisant avant tout à l'application de la théorie de l'émission lumineuse d'Einstein aux systèmes à niveaux d'énergie discrets se trouvant hors de l'équilibre thermodynamique. On a accordé une attention particulière à la notion de réaction qui doit être assurée dans les cavités résonnantes pour donner lieu à une émission stimulée. On a accordé une grande importance à la question de la formation dans la cavité résonnante d'un faisceau de lumière de haute directivité ainsi qu'à la question du contrôle de son contenu de mode. Le dernier chapitre de cette première partie est consacré à une récapitulation des principales formules de l'électronique quantique.

La seconde partie du cours est consacrée à la description des méthodes de création des milieux actifs et des lasers les plus répandus, tels que les lasers à hélium-néon, à argon, à cuivre, à CO_2, à CO, à colorants, à centres colorés, à rubis et à néodyme. On donne une description assez détaillée des lasers à gaz dynamique, des lasers chimiques, à excimères, à semiconducteurs et à électrons libres. La question du réglage de la longueur d'onde des émissions lasers est également abordée. Les deux derniers chapitres sont consacrés l'un à une revue des particularités des lasers les plus connus, et l'autre à une discussion des tendances de développement de l'électronique quantique et des applications des lasers.

L'électronique quantique fait largement appel aux idées et aux notions de la théorie des vibrations ainsi qu'aux méthodes de l'électronique UHF, quoiqu'il faille chercher ses fondements dans la spectroscopie et dans l'optique. C'est pour cela que tout le long de ce livre l'auteur s'est efforcé de démontrer que c'est la conjonction de la radioélectricité, de la spectroscopie et de l'optique ondulatoire qui a permis d'assurer une concentration spatiale, temporelle et spectrale de l'énergie du

rayonnement électromagnétique poussée pratiquement à la limite du possible. Compte tenu de l'intense développement que connaît aujourd'hui l'électronique quantique, nous avons porté notre attention pas tant aux paramètres records des lasers qu'à leurs principes de fonctionnement et à leurs potentialités. Nous avons cherché aussi à faire ressortir les similitudes qu'on décèle dans les processus évoluant dans les différents types de lasers tout en notant leurs particularités respectives.

L' auteur est heureux de témoigner ici que le livre n'a pu voir le jour que grâce aux contacts étroits qu'il a eu le bonheur d'entretenir avec son directeur de recherches A. Prokhorov.

L' auteur exprime sa profonde gratitude à ses amis et collaborateurs F. Bounkine, V. Vesselago, P. Pachinine, qui se sont donné la peine de lire son manuscrit et de suggérer des améliorations.

L' auteur qui fut dans les années quarante élève de la faculté de Physique technique de l'Université de Moscou dédie ce cours aux hommes de science qui furent à l'origine de l'Institut de Physique technique de Moscou.

N. Karlov

PREMIÈRE PARTIE

FONDEMENTS DE LA PHYSIQUE DES LASERS

Première leçon. LES COEFFICIENTS D'EINSTEIN

Définition de l'électronique quantique. Transitions stimulées et spontanées, coefficients d'Einstein. Cohérence du rayonnement stimulé.

Il convient de définir d'abord l'objet de ce cours consacré aux fondements de l'électronique quantique. Selon la définition donnée par la Grande Encyclopédie Soviétique, l'électronique quantique est la partie de la Physique consacrée à l'étude des méthodes d'amplification et de génération de radiations électromagnétiques fondées sur l'effet de l'émission stimulée de radiations par des systèmes quantiques se trouvant dans un état thermodynamique hors d'équilibre, ainsi qu'à l'étude des propriétés et des applications des amplificateurs et générateurs correspondants. Les dispositifs d'électronique quantique les plus connus sont les masers et les lasers. Dans un sens étroit, on peut dire que l'électronique quantique est la partie de la physique consacrée aux masers et aux lasers, ces termes désignant des amplificateurs et des générateurs de radiations électromagnétiques de la gamme UHF lorsqu'il s'agit des masers, et de la gamme optique lorsqu'il s'agit des lasers.

Les lasers se distinguent des sources lumineuses conventionnelles par un haut degré de concentration de l'énergie lumineuse dans un angle solide de très petite ouverture et dans un intervalle spectral très étroit, autrement dit par une grande directivité et par une haute monochromaticité du rayonnement émis. Une autre propriété importante des lasers réside dans leur aptitude à accumuler une grande énergie au cours d'infimes intervalles de temps. Les masers générateurs se distinguent des générateurs usuels de rayonnements radioélectriques par une extraordinaire stabilité des fréquences d'émission tandis que les masers amplificateurs présentent un niveau de bruits notablement inférieur à celui des amplificateurs radio classiques.

Ces propriétés résultent de ce qu'en électronique quantique on utilise pour l'amplification des radiations l'effet de l'émission stimulée. La terminologie officielle reflète exactement cet état de choses, puisque les termes « maser » et « laser » sont les abréviations de la définition anglaise « microwave (light) amplification by stimulated emission of radiation ».

Il s'ensuit qu'il n'y a aucune différence de principe entre les masers et les lasers, et toute différence s'estompe d'ailleurs lorsqu'on passe des ondes

millimétriques aux ondes submillimétriques. Mais ce sont surtout les lasers qui présentent de l'intérêt en raison de leur aptitude à réaliser la concentration spatiale, temporelle et spectrale de l'énergie lumineuse. Comme c'est la propriété dominante des lasers, on peut dire que c'est cette aptitude qui définit au mieux leurs fonctions. On entend par énergie lumineuse l'énergie des rayonnements des gammes de l'infrarouge, de la lumière visible et de l'ultraviolet.

Il est donc tout indiqué d'entendre par cours des fondements de l'électronique quantique un cours des fondements de la physique des lasers, illustré par un exposé des principes de fonctionnement des lasers les plus intéressants. La question, pourtant très importante, des applications des émissions laser est, par nécessité, réduite à la citation d'exemples caractéristiques.

Le fondement scientifique général de l'électronique quantique est le phénomène de l'émission stimulée, dont l'existence fut postulée par A. Einstein dès 1916. Dans les systèmes quantiques présentant des niveaux énergétiques discrets, on peut envisager trois types de transitions entre les états : les transitions stimulées par un champ électromagnétique, les transitions spontanées et les transitions de relaxation non radiatives. En électronique quantique, ce sont les propriétés de l'émission stimulée qui déterminent la cohérence du rayonnement émis et celle de l'amplification. L'émission spontanée détermine l'existence des bruits et sert à amorcer les processus d'amplification et d'excitation des oscillations ; conjointement avec les transitions de relaxation non radiatives, elle joue un rôle important dans la création et le maintien de l'état émissif hors d'équilibre thermodynamique.

A la suite d'une transition stimulée, le système quantique peut passer d'un état énergétique à un autre (fig. 1.1) soit avec absorption d'énergie électromagnétique (le système passe du niveau énergétique inférieur à un niveau situé plus haut dans l'échelle des énergies) soit avec émission d'énergie électromagnétique (transition d'un niveau supérieur à un niveau inférieur).

Les transitions stimulées jouissent de plusieurs propriétés importantes.

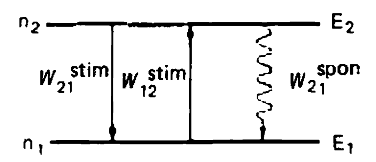


Fig. 1.1. Représentation d'un système de deux niveaux d'énergie $E_2 > E_1$ (ayant la population n_2 et n_1). Sont indiquées les transitions stimulées allant de haut en bas avec la probabilité W_{21}^{stim}, et de bas en haut avec la probabilité W_{12}^{stim} (flèches rectilignes), ainsi qu'une transition spontanée avec la probabilité W_{21}^{spon} (flèche ondulée).

1. La probabilité d'une transition stimulée n'est différente de zéro que pour un champ extérieur à la fréquence de résonance dont l'énergie $h\nu$ ($\hbar\omega$) des quanta coïncide avec la différence d'énergie des deux états isolés considérés (différence d'énergie des deux niveaux d'énergies respectivement égales à E_2 et E_1, l'indice 2 désignant la plus grande énergie et l'indice 1 la plus petite). Cette condition correspond au postulat de Bohr :

$$h\nu = \hbar\omega = E_2 - E_1. \tag{1.1}$$

2. Les quanta du champ électromagnétique émis lors des transitions stimulées sont identiques aux quanta du champ qui provoqua ces transitions. Cela signifie que le champ électromagnétique extérieur et le champ d'émission créé par les transitions stimulées ont même fréquence, même phase, même polarisation, même direction et même sens de propagation, autrement dit ils sont indiscernables (identiques).

3. La probabilité, par unité de temps, d'une transition stimulée est proportionnelle à la densité d'énergie du champ extérieur, rapportée à l'unité d'intervalle spectral (densité volumique spectrale de l'énergie) ϱ_ν [J/(cm^3·Hz)] :

$$W_{12}^{\text{stim}} = B_{12}\varrho_\nu, \tag{1.2}$$

$$W_{21}^{\text{stim}} = B_{21}\varrho_\nu, \tag{1.3}$$

où B_{12} et B_{21} sont les coefficients d'Einstein respectivement de l'absorption et de l'émission stimulées, l'ordre des indices 1 et 2 indiquant le sens de la transition.

Ainsi l'émission stimulée de radiations est déterminée par des radiations extérieures. L'identité absolue des radiations stimulées (i.e. des radiations secondaires) et des radiations d'excitation (i.e. des radiations primaires) a pour conséquence la cohérence de l'amplification et de l'émission.

Il existe cependant, en plus de l'émission de radiations stimulée par un champ extérieur, une émission spontanée de radiations. Les atomes (molécules, ions, électrons) occupant un niveau d'énergie supérieur peuvent effectuer des transitions spontanées à des états d'énergie inférieurs. La décomposition de l'état d'énergie supérieur accompagnant une émission spontanée est analogue à la désintégration radioactive d'un noyau instable. La probabilité des transitions spontanées est indépendante du champ électromagnétique extérieur puisque ces transitions spontanées ne sont aucunement liées au champ appliqué. De ce fait, l'émission spontanée n'est pas cohérente vis-à-vis du champ appliqué et se comporte comme des bruits propres. Comme l'émission spontanée provoque l'évacuation du niveau énergétique supérieur, elle contribue à ramener les atomes à l'état énergétique inférieur.

L'émission spontanée est, par principe, un effet quantique qui ne se

laisse pas expliquer par la théorie classique. En mécanique classique, un état métastable, possédant une énergie supérieure à celle d'un état fondamental stable, peut subsister indéfiniment en l'absence de perturbations extérieures. Selon la mécanique quantique, cet état métastable doit subir une décomposition spontanée avec une vitesse moyenne différente de zéro.

Examinons plus en détail les propriétés des émissions stimulée et spontanée. Suivant A. Einstein, on peut établir un rapport entre les probabilités des transitions spontanées et stimulées à l'aide de la thermodynamique.

Soit un ensemble de particules quantiques contenues dans un thermostat à la température T. Cherchons les conditions d'équilibre de cet ensemble soumis à l'action de son propre champ de rayonnement, qui est absorbé ou émis lors des transitions entre les niveaux d'énergie des particules.

Supposons que notre système quantique possède deux niveaux d'énergie $E_2 > E_1$, et que les transitions entre ces niveaux donnent lieu à l'absorption ou à l'émission d'un quantum d'énergie $h\nu$. A l'état d'équilibre thermodynamique, l'ensemble ne perd ni n'acquiert aucune énergie. Il s'ensuit que dans l'unité de temps, le nombre total de transitions allant dans notre ensemble du niveau supérieur au niveau inférieur doit être égal au nombre total de transitions allant en sens inverse. Le nombre total de transitions dépend du nombre de particules occupant les niveaux d'énergie concernés, ou comme on le dit en électronique quantique, de la population des niveaux.

A l'équilibre thermique, la distribution des particules entre les niveaux est donnée par la formule de Boltzmann :

$$\frac{n_2}{g_2} = \frac{n_1}{g_1} \exp\left[-\frac{E_2 - E_1}{kT}\right], \tag{1.4}$$

où g_2 et g_1 sont les multiplicités de dégénérescence (poids statistiques) des niveaux 2 et 1, k est la constante de Boltzmann.

Le nombre total des transitions $2 \to 1$ est égal au produit du nombre n_2 de particules se trouvant sur le niveau 2 par la probabilité de la transition $2 \to 1$ par particule et par unité de temps.

On sait qu'une particule libre se trouvant à l'état excité finit toujours par se débarrasser de l'énergie excédentaire en émettant un quantum d'énergie indépendamment de toute action extérieure. La probabilité d'une transition spontanée d'une particule du niveau supérieur au niveau inférieur est proportionnelle au temps. Par hypothèse, cette probabilité serait égale pour un temps dt à

$$dw^{\text{spon}} = A_{21}dt, \tag{1.5}$$

où A_{21} est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée. On postule donc que la probabilité de l'émission spontanée par unité de temps ou, ce qui revient au même, le taux de dépeuplement spontané, est constante

et égale, par définition, au coefficient d'Einstein A_{21} :

$$W_{21}^{spon} = A_{21}. \tag{1.6}$$

L'émission spontanée caractérise le processus du passage spontané d'une particule d'un état de plus grande énergie à un état de plus petite énergie. Les transitions spontanées évoluant en sens inverse sont impossibles. L'occupation des niveaux supérieurs par des particules s'effectue dans le cas considéré grâce à des transitions stimulées s'accompagnant de l'absorption de quanta d'énergie.

Les particules appartenant à un ensemble donné sont soumises à l'action du champ de leur rayonnement propre dont la densité d'énergie rapportée à l'unité d'intervalle spectral est égale à ϱ_ν. Ce champ stimule les transitions d'un état de plus grande énergie à un état de plus petite énergie et vice versa. Selon les hypothèses (1.2) et (1.3), les probabilités de ces transitions sont proportionnelles à ϱ_ν. En combinant (1.6), (1.4), (1.3) et (1.2), on peut déduire de la condition d'équilibre

$$g_1 B_{12} \varrho_\nu e^{-E_1/kT} = g_2(B_{21}\varrho_\nu + A_{21})e^{-E_2/kT} \tag{1.7}$$

des relations entre les coefficients A_{21}, B_{12}, B_{21}. Dans l'équation (1.7), on a égalé les uns aux autres les nombres totaux de transitions évoluant de bas en haut (à gauche) et de haut en bas (à droite). Cette équation permet de trouver la densité d'énergie du champ de rayonnement du système quantique considéré à l'état d'équilibre :

$$\varrho_\nu = \frac{A_{21}}{B_{21}}\left\{\frac{g_1 B_{12}}{g_2 B_{21}} \exp\frac{E_2 - E_1}{kT} - 1\right\}^{-1}. \tag{1.8}$$

On en déduit plusieurs conséquences importantes. Einstein postula que le rayonnement émis ou absorbé lors des transitions entre des états énergétiques du système quantique se trouvant dans un état d'équilibre est décrit par la formule de Planck du rayonnement d'équilibre du corps noir. Pour le cas de l'espace libre on trouve alors

$$\varrho_\nu = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} \frac{h\nu}{\exp[h\nu/kT] - 1}, \tag{1.9}$$

où c est la vitesse de la lumière.

Si on compare ces deux dernières formules à la règle des fréquences de Bohr (1.1), on constate aussitôt que celle-ci est compatible avec le postulat d'Einstein. En poursuivant l'analyse, on arrive à la conclusion que les coefficients d'Einstein pour les transitions stimulées B_{12} et B_{21} vérifient la relation

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21}. \tag{1.10}$$

Cette relation implique l'équiprobabilité des processus d'émission et

d'absorption stimulés (rapportés à un état non dégénéré) et c'est pour cela qu'elle est importante.

D'autre part, la probabilité de l'émission spontanée est proportionnelle au coefficient d'Einstein de l'émission stimulée :

$$A_{21} = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} h\nu B_{21}. \tag{1.11}$$

Tout cela montre que pour décrire l'état d'équilibre thermodynamique entre un système de particules quantiques (présentant des niveaux discrets) et son propre champ de rayonnement, Einstein a introduit des transitions stimulées par ce champ entre des états d'énergie supérieurs et inférieurs ayant les mêmes probabilités dans le sens direct et dans le sens inverse. En exigeant que l'équilibre soit respecté, on arrive à une relation entre les émissions spontanée et stimulée telle que la probabilité des transitions par particule et par unité de temps s'accompagnant de l'émission de quanta soit égale à

$$W^{\text{ém}} = \left(\frac{8\pi\nu^2}{c^3} h\nu + \varrho_\nu\right) B_{21}. \tag{1.12}$$

Ce qui importe est que $W^{\text{ém}}$ est proportionnel à B_{21} : il s'ensuit que chaque fois que les transitions stimulées sont interdites, il ne peut y avoir d'émission spontanée, et inversement chaque fois que l'émission spontanée manque, il ne peut y avoir d'émission stimulée.

Vis-à-vis de chaque particule, le rayonnement d'équilibre de l'ensemble des particules se comporte comme un champ électromagnétique extérieur stimulant l'absorption ou l'émission d'énergie selon l'état de la particule. Il s'ensuit que les formules (1.10) à (1.12), qui ont été établies pour le cas où les conditions d'équilibre sont respectées, restent valables dans le cas d'un système quantique soumis à l'action d'un champ de rayonnement extérieur.

Dans l'expression (1.12) figure la quantité $\frac{8\pi\nu^2}{c^3}$ qui représente pour l'espace libre le nombre d'oscillateurs (ou bien le nombre de types d'ondes, de vibrations ou de modes) contenus dans l'unité d'intervalle spectral. La probabilité de l'émission spontanée étant proportionnelle à ν^3, son influence est faible aux fréquences radio mais grande aux fréquences optiques.

Cependant, en électronique quantique la probabilité d'émission stimulée est proportionnelle à la densité d'énergie du champ excitateur. Lorsque la densité d'énergie de ce champ est suffisamment grande, l'émission est en majeure partie stimulée et cohérente.

Il convient maintenant de s'arrêter plus longuement sur la question de la cohérence du rayonnement stimulé. Notons une nouvelle fois que tandis

que l'émission spontanée est un effet purement quantique (du point de vue classique, un atome excité libre peut exister indéfiniment dans cet état), on peut trouver des analogies classiques à l'émission stimulée.

Par exemple, lorsqu'un oscillateur harmonique classique exécutant des oscillations libres est soumis à l'action d'un rayonnement monochromatique de résonance, il est excité par cette force extérieure. La fréquence et la phase de ses oscillations sont alors déterminées par la fréquence et la phase de la force extérieure. Pour un certain rapport de phase entre les oscillations libres de l'oscillateur et la force extérieure, la puissance absorbée par l'oscillateur peut devenir négative. Cela signifie que pour certaines valeurs de la phase, l'oscillateur soumis à l'action d'un champ extérieur cède de l'énergie à ce champ extérieur. Ainsi se trouve réalisée une émission stimulée, qui doit être cohérente du fait de la nature harmonique classique de l'oscillateur.

Il importe de remarquer cependant que l'effet classique de la transmission de l'énergie de l'oscillateur au champ, qui se réalise lorsque les oscillations de l'oscillateur sont en opposition de phase aux vibrations du champ, est tel que l'énergie émise est proportionnelle à l'intensité du champ de la force extérieure. Mais la probabilité de l'émission stimulée est proportionnelle à la densité d'énergie du champ stimulant, i.e. au carré de l'intensité de ce champ. On peut construire une théorie classique de l'émission stimulée, mais uniquement si on considère un ensemble d'oscillateurs classiques susceptibles de se diviser en groupes sous l'action du champ extérieur. Les processus radiatifs stimulés sont alors déterminés par l'émission cohérente de groupes constitués dans lesquels la distance entre les particules est petite devant la longueur d'onde.

Revenons maintenant au cas quantique.

Le critère de la cohérence des vibrations est l'existence d'un rapport de phase constant entre ces vibrations. En théorie quantique, en vertu de la relation d'incertitude entre le nombre de quanta et la phase de l'onde

$$\Delta n \Delta\varphi \geqslant 1/2, \qquad (1.13)$$

la phase φ de l'onde électromagnétique ne peut avoir une valeur déterminée que si le nombre n de quanta est indéterminé. Il est donc absurde de parler de la phase d'un quantum. Mais si on connaît la différence de phase de deux ondes au lieu des valeurs de la phase de chacune de ces ondes, la relation d'incertitude permet de déterminer le nombre total de quanta tout en laissant indéterminée la question de savoir quels quanta on doit attribuer à chaque onde. Par conséquent, lorsqu'on additionne des radiations électromagnétiques cohérentes correspondant à plusieurs quanta pour former une seule onde, on dit qu'on additionne des quanta identiques et indiscernables.

On ne peut discerner des quanta correspondant à des radiations de même fréquence, de mêmes direction et sens de propagation, de même

phase et de même polarisation. Les quanta du rayonnement électromagnétique, i.e. les photons, sont régis par la statistique de Bose-Einstein ; le nombre de quanta revenant à un oscillateur de champ (à un type d'oscillations, à un mode) et caractérisés donc par les mêmes valeurs de la fréquence, de la phase, etc., peut être infiniment grand. L'état du champ de rayonnement tout entier dépend du nombre de photons par mode. Lorsque le nombre de quanta indiscernables est grand, cela permet de passer à une analyse classique du rayonnement électromagnétique qui fait usage du principe de la superposition des vibrations, les cohérentes y compris. Par suite des propriétés spécifiques des bosons, à mesure que le nombre d'actes d'émission stimulée par unité de temps augmente, l'intensité de l'onde stimulante, i.e. de l'onde initiale, augmente aussi, tandis que sa phase, sa fréquence, etc., ne changent pas.

Une théorie quantique conséquente de l'émission et de l'absorption de la lumière a été élaborée, en 1927, par P. Dirac. Les considérations qualitatives sur l'émission spontanée, l'émission stimulée et la cohérence du rayonnement stimulé, données ci-dessus, sont exposées de façon rigoureuse dans les §§ 61, 62 du livre bien connu de P. Dirac « Principles of quantum mecanics ».

Néanmoins, on peut arriver à des résultats importants à l'aide d'une théorie semi-classique dont la mise en œuvre est courante en électronique quantique. Dans cette approche, on divise le système « particule-champ de rayonnement » en deux parties : la particule quantique et le champ de rayonnement classique. On décrit la particule à l'aide d'une fonction d'onde vérifiant l'équation de Schrödinger contenant l'hamiltonien d'interaction avec le champ classique que l'on assimile à une perturbation. Cette équation décrit l'influence qu'exerce le champ sur la particule et permet, ne serait-ce qu'en principe, de calculer le moment dipolaire de la particule. On suppose ensuite que le dipôle calculé rayonne selon les lois classiques, ce qui permet d'évaluer l'influence que la particule exerce en retour sur le champ. Il est facile de s'assurer ici que les quanta émis conservent leur cohérence. Le champ détermine l'apparition d'un moment dipolaire oscillant, qui est cohérent à la force excitatrice. A son tour, le moment dipolaire oscillant émet un champ qui lui est cohérent.

On sait que c'est cette cohérence, qui est à l'origine des nombreuses propriétés des lasers, qui les rend si différents des sources lumineuses usuelles.

Deuxième leçon. LARGEUR DES RAIES

Relation d'incertitude « énergie-temps », durée de vie naturelle, largeur du spectre d'émission spontanée. Profil de raie de Lorentz. Probabilité des transitions stimulées assurant une émission monochromatique. Elargissements homogène et inhomogène des raies. Profil gaussien d'une raie élargie par effet Doppler.

On se propose d'examiner ici la question de la largeur des raies d'émission (ou d'absorption).

Jusqu'à présent, il n'a été question que de transitions entre deux niveaux d'énergie, et on ne tenait aucun compte de la largeur finie des niveaux. Or il faut en tenir compte, car tous les processus qui réduisent la durée de vie des particules sur les niveaux provoquent un élargissement des raies émises par les transitions. En effet, il faut que la détermination de l'énergie d'un état soit effectuée en un temps ne dépassant pas la durée de vie τ de cet état. Or cela implique, selon la relation d'incertitude « énergie-temps »

$$\Delta E \Delta t \geqslant \hbar, \tag{2.1}$$

que l'incertitude sur la valeur de l'énergie ne peut être inférieure à $\hbar/\tau$. L'incertitude sur l'énergie de l'état entraîne une incertitude sur la fréquence $1/2\pi\tau$ de la radiation émise par la transition correspondante. La constante de temps τ représente le temps au cours duquel le système excité perd son excédent d'énergie. La valeur de τ est déterminée par les taux d'émission spontanée et des processus de relaxation non radiatifs.

En l'absence de toute influence extérieure, la durée de vie d'un état dépend de l'émission spontanée. Par conséquent, la largeur minimale ou largeur naturelle $\Delta\nu_0$ d'une raie est déterminée par la probabilité A_{21} de la transition spontanée :

$$\Delta\nu_0 = A_{21}/2\pi. \tag{2.2}$$

En règle générale, la largeur naturelle ne présente de l'intérêt qu'aux très hautes fréquences ($A_{21} \sim \nu^3$) et que pour des transitions de haute résolution. Généralement, on peut négliger l'influence qu'exerce l'émission spontanée sur la largeur de la raie puisque dans les conditions réelles les transitions de relaxation réduisent la durée de vie beaucoup plus fortement.

On a déjà signalé que dans le cas des systèmes à niveaux d'énergie discrets, outre les transitions stimulées et spontanées, un rôle important revient aux transitions de relaxation non radiatives. Ces dernières résultent des interactions de la particule quantique avec son environnement. Le mécanisme de ces processus d'interaction dépend grandement du système considéré. Ce peut être une interaction entre l'ion et le réseau du cristal ou des chocs entre les molécules du gaz ou du liquide, etc. Le résultat final des processus de relaxation est un échange d'énergie entre le sous-système des particules concernées et les mouvements thermiques du système tout entier, échange qui assure l'établissement de l'équilibre thermodynamique dans le système.

Usuellement, on dénote par T_1 le temps de l'établissement de l'équilibre ou la durée de vie d'une particule sur un niveau, et on l'appelle temps de relaxation longitudinal. Cette terminologie remonte à l'époque des études des phénomènes de la résonance magnétique nucléaire et de la résonance

paramagnétique électronique. La relaxation longitudinale correspond à l'alignement du vecteur aimantation haute fréquence du système de particules suivant la direction du champ magnétique permanent extérieur. On peut définir aussi un temps de relaxation transversal T_2 qui correspond au déplacement du vecteur aimantation dans le plan perpendiculaire à la direction du champ magnétique appliqué.

On s'intéresse surtout au comportement de grands ensembles de particules, notamment aux moments dipolaires électrique ou magnétique de ces ensembles. Le moment total d'un ensemble dépend des relations de phase entre les moments des particules individuelles. Posons qu'à l'instant initial toutes les particules possèdent des moments dipolaires qui oscillent en phase. Au cours du temps, cette coïncidence des phases se détruit progressivement. Le temps T_2 représente l'intervalle de temps au bout duquel les phases des particules deviennent aléatoires les unes par rapport aux autres.

Tout processus contribuant au temps de relaxation T_1, autrement dit tout processus donnant lieu à une perte d'énergie des particules, conduit à des déphasages. Par conséquent

$$T_2 \leqslant T_1. \tag{2.3}$$

Mais il existe des interactions qui, sans modifier l'énergie d'un ensemble de particules, accroissent le désordre et détruisent les relations de phase entre les particules de l'ensemble. Par exemple, dans le cas de chocs entre les molécules gazeuses, une des molécules exécute la transition $2 \to 1$ et l'autre la transition $1 \to 2$. L'énergie du système tout entier n'est donc pas modifiée mais l'information de phase est effacée et la mémoire de phase est perturbée. On peut admettre que le temps T_2 représente la durée de la mémoire de phase ou le temps de transmission de l'énergie d'une particule à une autre sur un même niveau d'énergie.

Dans tous les systèmes où les interactions mutuelles des particules sont notables (interactions spin-spin, en général toutes les interactions dipolaires, chocs élastiques, etc.), $T_2 < T_1$ et bien souvent $T_2 \ll T_1$. Dans les jets moléculaires où les particules en mouvement n'éprouvent pas de chocs mutuels, $T_2 = T_1$, et ce temps est égal au temps de parcours à travers la région d'interaction avec le champ de rayonnement. Cela ne vaut évidemment que dans le cas d'une longue durée de vie naturelle ($T_1 \ll 1/A_{21}$).

Comme le temps T_2 est le temps de relaxation le plus court, c'est lui qui détermine la largeur $\Delta\nu_L$ de la raie d'émission :

$$\Delta\nu_L = 1/2\pi T_2. \tag{2.4}$$

Dans ce qui suit, on désignera, par raison de commodité, la durée de vie de la particule sur un niveau par τ, et par τ_0 la durée de vie naturelle (i.e. la durée de vie vis-à-vis de l'émission spontanée). Le temps de relaxation

qui caractérise, dans un processus, la largeur de la raie d'émission de la transition considérée sera noté $1/2\pi\Delta\nu_L = 1/\Delta\omega_L$

On voit que la valeur finie de la durée de vie d'une particule à l'état excité a pour conséquence l'élargissement des niveaux d'énergie. L'émission provenant de niveaux élargis présente une certaine largeur spectrale. Le mécanisme le plus général et le plus fondamental qui impose une limite supérieure à la durée de vie d'une particule sur un niveau excité est l'émission spontanée. Celle-ci doit donc avoir une largeur spectrale correspondant au taux des actes de dépeuplement spontané.

L'électrodynamique quantique permet de calculer la distribution spectrale des quanta de l'émission spontanée issus d'un niveau de largeur

$$\Delta E = \hbar/\tau_0. \tag{2.5}$$

Le profil de la raie d'émission spontanée présente la forme dite de Lorentz avec une largeur

$$\Delta\nu_L = \Delta E/h = 1/2\pi\tau_0. \tag{2.6}$$

La forme de Lorentz d'une raie est déterminée par le facteur de forme

$$q(\nu) = \frac{1}{2\pi}\,\frac{\Delta\nu_L}{(\nu - \nu_0)^2 + \Delta\nu_L^2/4} \tag{2.7}$$

et a l'allure d'une courbe de résonance dont le maximum correspond à la fréquence $\nu = \nu_0$ et qui arrive à mi-hauteur du maximum à la fréquence $\nu = \nu_0 \pm \Delta\nu_L/2$. De toute évidence la largeur totale de cette courbe à mi-hauteur est égale à $\Delta\nu_L$.

Si l'on tient compte de l'éventualité d'un dépeuplement spontané non seulement du niveau supérieur mais aussi du niveau inférieur, ce dernier n'étant pas le niveau fondamental, on doit entendre par $\Delta\nu_L$, figurant dans la formule (2.7), la quantité définie par la somme des taux de dépeuplement $1/\tau_{02}$ et $1/\tau_{01}$ de ces niveaux :

$$\Delta\nu_L = \frac{1}{2\pi}\left(\frac{1}{\tau_{02}} + \frac{1}{\tau_{01}}\right) \tag{2.8}$$

L'expression (2.7) se laisse établir facilement dans l'approximation classique.

L'équation de mouvement du dipôle oscillant à amortissement radiatif se réduit à l'équation de l'oscillateur harmonique à frottement visqueux :

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_{01}x = 0, \tag{2.9}$$

où ω_{01} est la fréquence circulaire de l'électron oscillant appartenant au dipôle formé par l'électron et le noyau et γ le coefficient classique d'amortissement du rayonnement émis par le dipôle. La solution de l'équation (2.9) est bien connue :

$$x = Ce^{-\gamma t/2}e^{j\omega_1 t}, \tag{2.10}$$

où $\omega_1^2 = \omega_{01}^2 - (\gamma/2)^2$ et C est une amplitude arbitraire. Comme l'intensité du rayonnement émis par l'oscillateur de Lorentz considéré est proportionnelle au carré de l'amplitude des oscillations de l'électron dans l'oscillateur, on voit que l'intensité du rayonnement décroît exponentiellement en fonction du temps avec un temps caractéristique

$$\tau = 1/\gamma. \tag{2.11}$$

Ce temps est la durée de vie moyenne de l'état excité.

A la dépendance temporelle (2.10) correspond une distribution spectrale $g(\omega)$ que l'on trouve facilement à l'aide d'une transformation de Fourier de $x(t)$:

$$g(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} x(t) e^{-j\omega t} dt = \frac{jC/\sqrt{2\pi}}{\omega_1 - \omega + j\gamma/2}. \tag{2.12}$$

Dans (2.12) il a été tenu compte de ce que (2.10) a été obtenu pour $t \geqslant 0$. La formule (2.12) donne la distribution spectrale des amplitudes. La distribution spectrale des intensités s'obtient en prenant le carré du module de la distribution des amplitudes. Par conséquent,

$$G(\omega) = g(\omega) g^*(\omega) = \frac{C^2/2\pi}{(\omega_1 - \omega)^2 + \gamma^2/4} \tag{2.13}$$

En introduisant les notations $\gamma = 2\pi\Delta\nu_L$, $\omega_1 = 2\pi\nu_0$, $\omega = 2\pi\nu$ et en posant que la constante $C^2 = 4\pi\Delta\nu_L$, on retrouve l'expression (2.7) du facteur de forme $q(\nu)$.

Telles sont les propriétés spectrales du rayonnement spontané. Comme son intensité dépend de la fréquence, sa probabilité en dépend aussi et présente une densité spectrale égale à

$$W_\nu^{\text{spon}} = q(\nu) W^{\text{spon}} = A_{21} q(\nu). \tag{2.14}$$

Il faut que

$$\int_\nu W_\nu^{\text{spon}} d\nu = W^{\text{spon}}. \tag{2.15}$$

On en déduit la condition de normalisation du facteur de forme $q(\nu)$:

$$\int_0^\infty q(\nu) d\nu = 1, \tag{2.16}$$

dont il a été tenu compte dans (2.7) en admettant que $\nu_0 \gg \Delta\nu_L/2$.

A l'aide de considérations de thermodynamique très générales, on a démontré ci-dessus que les probabilités de l'émission spontanée et de l'émission stimulée étaient liées l'une à l'autre. Par conséquent, la probabilité de l'émission stimulée dépend aussi de la fréquence et possède une certaine

densité spectrale

$$W_\nu^{\text{stim}} = q(\nu)\,W^{\text{stim}} = q(\nu)B_{21}\varrho_\nu, \tag{2.17}$$

avec

$$W^{\text{stim}} = \int_\nu q(\nu)\varrho_\nu B_{21}d\nu. \tag{2.18}$$

Si le rayonnement stimulant est monochromatique

$$\varrho_\nu = \varrho\,\delta(\nu - \nu_0), \tag{2.19}$$

où ϱ est la densité volumique de ce rayonnement et $\delta(x)$ la fonction delta de Dirac. Dans ces conditions, on calcule aisément l'intégrale figurant dans (2.18) et on trouve

$$W^{\text{stim}} = q(\nu_0)B_{21}\varrho = 2B_{21}\varrho/\pi\Delta\nu_{\text{L}}. \tag{2.20}$$

Toute diminution de la durée de vie déterminant une largeur finie $\Delta\nu_{\text{L}}$ de la raie d'émission diminue la probabilité des transitions stimulées par le champ de rayonnement monochromatique, en raison inverse de la largeur de la raie.

L'élargissement de la raie dû à une durée de vie finie des états liés entre eux par la transition envisagée est dit homogène. Chaque atome se trouvant dans l'état convenable lors des transitions dans le sens des énergies décroissantes émet une raie de largeur totale $\Delta\nu_{\text{L}}$ et de forme spectrale $q(\nu)$. De même tout atome se trouvant dans l'état inférieur correspondant absorbe lors de la transition inverse un rayonnement contenu dans un spectre de largeur totale $\Delta\nu_{\text{L}}$ conformément à la dépendance spectrale $q(\nu)$. Il est impossible d'attribuer une certaine composante spectrale du spectre $q(\nu)$ à un atome déterminé. Dans le cas d'un élargissement homogène et quelle qu'en soit l'origine, la dépendance spectrale $q(\nu)$ est la caractéristique spectrale de chaque atome et de l'ensemble des atomes. Toute modification de cette caractéristique, qui est en principe réalisable en exerçant une action sur l'ensemble des atomes, se manifeste simultanément et de la même façon pour tous les atomes.

On peut citer comme exemples d'élargissement homogène des raies, premièrement, la largeur naturelle et, deuxièmement, l'élargissement déterminé par les collisions dans les gaz.

La situation est fort différente dans le cas de l'élargissement inhomogène. Les raies spectrales qu'on observe dans les études expérimentales peuvent se présenter comme une superposition non structurée de plusieurs raies spectralement irrésolubles à élargissement homogène. Dans ces cas, chaque particule émet ou absorbe un rayonnement mais pas seulement dans les limites de la raie observée. On dit alors qu'il s'agit d'une raie à élargissement inhomogène. L'élargissement inhomogène des raies spectrales peut avoir

pour origine tout processus faisant apparaître des différences dans les conditions d'émission (ou d'absorption) pour une partie des atomes identiques de l'ensemble considéré de particules, ou encore la présence dans un ensemble de particules d'atomes ayant des propriétés spectrales proches mais cependant différentes (structures hyperfines) et dont les raies élargies de façon homogène ne se recouvrent que partiellement. Le terme « élargissement inhomogène » a fait son apparition en spectroscopie de la résonance magnétique nucléaire, où ce type d'élargissement provient de l'inhomogénéité du champ magnétique appliqué dans les limites de l'échantillon étudié. L'élargissement observé dans le cas de cristaux luminescents dopés a une nature semblable, puisque l'inhomogénéité du champ électrique intercristallin détermine des différences dans le déplacement par effet Stark de la fréquence d'émission par les centres d'impuretés situés en différents points du cristal considéré.

Une analogie classique de l'élargissement inhomogène est fournie par l'élargissement par effet Doppler que l'on observe dans les gaz sous faible pression ou à haute fréquence.

Les atomes (les molécules, les ions) des gaz sont animés de mouvements thermiques. Dans le cas de particules se déplaçant vers l'observateur avec la vitesse u, leur fréquence d'émission est modifiée par l'effet Doppler de premier ordre d'une quantité $\nu_0 u/c$, où ν_0 est la fréquence d'émission d'une particule au repos et c la vitesse de la lumière. Du fait de l'élargissement naturel, la ligne d'émission de fréquence ν_0 est transformée en une raie spectrale, mais l'élargissement étant homogène, la raie spectrale toute entière subit le déplacement de fréquence $\nu_0 u/c$. Comme les vitesses des particules du gaz sont différentes, leurs fréquences d'émission subissent des déplacements différents et le profil résultant de la raie spectrale émise par le gaz dépend de la distribution des vitesses des particules. Cela ne vaut, bien entendu, que si la largeur naturelle de la raie est beaucoup plus petite que les déplacements de fréquence par effet Doppler. Mais comme c'est le cas général, si l'on désigne par $p(u)$ la fonction de distribution des vitesses des particules, il apparaît que le facteur de forme $q(\nu)$ de la raie déformée par effet Doppler est lié à $p(u)$ par la relation simple :

$$q(\nu)d\nu = p(u)du. \tag{2.21}$$

La fréquence observée ν est donnée par

$$\nu = \nu_0(1 + u/c). \tag{2.22}$$

Par conséquent, $u = c(\nu - \nu_0)/\nu_0$ et $du = (c/\nu_0)d\nu$, d'où

$$q(\nu) = \frac{c}{\nu_0} p\left(c \frac{\nu - \nu_0}{\nu_0}\right). \tag{2.23}$$

Dans le cas d'une distribution maxwellienne des vitesses

$$p(u) = \frac{1}{u_0\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{u}{u_0}\right)^2\right], \tag{2.24}$$

où la vitesse thermique moyenne est donnée par

$$u_0 = \sqrt{2kT/m}, \tag{2.25}$$

où k est la constante de Boltzmann, T la température du gaz et m la masse de l'atome (ou de la molécule) de gaz. En toute rigueur, la loi de distribution de Maxwell ne s'applique qu'aux systèmes à l'état d'équilibre thermique. Néanmoins, les écarts à cette loi sont généralement petits même pour des particules excitées (et rayonnantes). En tout cas les estimations quantitatives auxquelles on arrive en postulant une distribution maxwellienne sont correctes. En combinant (2.25), (2.24) et (2.23), on peut mettre $q(\nu)$ sous la forme

$$q(\nu) = \frac{c}{u_0\nu_0\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{c^2}{u_0^2}\left(\frac{\nu-\nu_0}{\nu_0}\right)^2\right] = \frac{1}{\Delta\nu_T\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu-\nu_0}{\Delta\nu_T}\right)^2\right], \tag{2.26}$$

où on a désigné par $\Delta\nu_T$ la largeur spectrale caractéristique, qui est égale au déplacement de fréquence par effet Doppler correspondant à la vitesse thermique moyenne de la particule rayonnante :

$$\Delta\nu_T = \nu_0 u_0/c. \tag{2.27}$$

La raie ayant la forme définie par (2.26) est appelée raie élargie par effet Doppler. Cette forme correspond à la fonction de Gauss et elle est symétrique par rapport à la fréquence centrale ν_0. Dans le cas d'un écart notable par rapport à ν_0, le déclin de la courbe $q(\nu)$ (2.26) est beaucoup plus rapide que dans le cas du profil de Lorentz (2.7). Près de la fréquence centrale, la pente de la courbe gaussienne est moins forte. Il est évident que sa largeur est définie par le paramètre $\Delta\nu_T$. Lorsqu'on s'écarte du centre de $\Delta\nu_T$, l'intensité décroît de e fois. Si l'on définit la largeur de la raie par la distance entre les points de la courbe se trouvant à distances égales de la fréquence centrale où l'intensité est deux fois plus petite que l'intensité maximale (largeur totale à mi-hauteur), on trouve de (2.26) pour le cas de l'élargissement par effet Doppler que cette largeur est égale à

$$\Delta\nu_D = \Delta\nu_T 2\sqrt{\ln 2} = 2\nu_0\sqrt{\frac{2kT}{mc^2}\ln 2}. \tag{2.28}$$

On notera que la forme de Gauss décrite par (2.26) est normée à l'unité : $\int_0^\infty q(\nu)d\nu = 1$ en admettant que $\nu_0 \gg \Delta\nu_T$. La figure 2.1 représente les for-

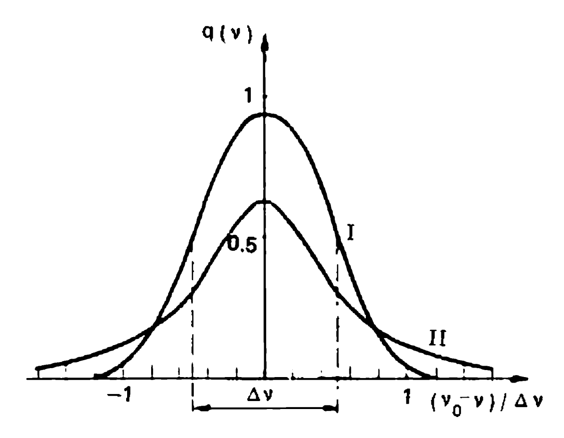


Fig. 2.1. Formes des raies de Gauss (*I*) et de Lorentz (*II*) (normalisées à l'unité) ayant la même largeur à mi-hauteur ($\Delta\nu$ sur l'axe d'abscisses). L'échelle adoptée pour l'axe d'ordonnées est en unités $1/\Delta\nu$.

mes des raies pour le cas d'un élargissement homogène (formule (2.7)) et pour celui d'un élargissement inhomogène (formule (2.26)) lorsque $\Delta\nu_L = \Delta\nu_D$.

A mesure que la fréquence augmente, l'influence exercée par l'effet Doppler augmente. Dans la partie visible du spectre, aux températures modérées (300 à 600 K) $\Delta\nu_D$ est de l'ordre de 0,8 à 1,5 GHz. Pour la pratique, il est plus commode d'utiliser la formule donnant le déplacement en longueurs d'onde :

$$\Delta\lambda_D/\lambda_0 = 7\cdot 10^{-7}\sqrt{T/M}\,, \tag{2.29}$$

où M est la masse moléculaire relative. Comme $d\lambda/\lambda = -d\nu/\nu$, on peut écrire aussi

$$\Delta\nu_D/\nu_0 = 7\cdot 10^{-7}\sqrt{T/M}\,. \tag{2.30}$$

Comme $\Delta\nu_D(T, M)$ est proportionnel à la racine carrée de T/M, on peut admettre, pour des estimations grossières, que $\Delta\nu_D/\nu_0$ (ou $\Delta\lambda_D/\lambda_0$) est une quantité constante égale à $(2 \text{ à } 3)\cdot 10^{-6}$, par exemple dans les conditions de la décharge gazeuse luminescente.

En anticipant, citons deux exemples.

Pour un laser à CO_2 (émission par les molécules CO_2 à environ 400 K sur une longueur d'onde voisine de 10 μm), $\Delta\nu_D$ est égal à 60 MHz ; pour un laser à hélium-néon (les atomes de néon émettent à 400 K sur une longueur d'onde de 0,63 μm), la largeur de la raie élargie par effet Doppler atteint 1,35 à 1,40 GHz.

Reprenons la question de l'élargissement homogène. Comme on le verra plus loin, on peut négliger la largeur naturelle des raies jusqu'aux très hau-

tes fréquences correspondant à l'ultraviolet. Dans les gaz, l'élargissement homogène est déterminé par les collisions des atomes. Parmi les nombreux processus collisionnels se produisant dans les gaz, il en est qui s'accompagnent d'une variation de phase des vibrations de la particule excitée. Dans l'approximation classique où on assimile la particule excitée à un oscillateur exécutant des oscillations d'amplitude constante avec une certaine phase, la variation de cette dernière entraîne une variation des interactions de l'oscillateur avec le champ électromagnétique ; cette variation des interactions présente un caractère aléatoire. Si à la suite de une ou de plusieurs collisions la relation de phase initiale se trouve modifiée, on peut admettre que le champ interagit avec un nouvel oscillateur, l'ancien ayant disparu. De ce fait, le temps de libre parcours moyen de l'oscillateur entre deux collisions affectant sa phase représente la durée de vie moyenne des particules du gaz vis-à-vis de ce type de collisions. Ce temps t_{col} détermine, conformément à la formule (2.4), la largeur collisionnelle $\Delta\nu_{col}$ de la raie :

$$\Delta\nu_{col} = 1/2\pi\tau_{col}. \tag{2.31}$$

Comme les collisions entre les particules d'un gaz sont un processus aléatoire qui, pour un partenaire donné, exerce en moyenne la même action sur toutes les molécules (ou atomes) d'une sorte donnée, l'élargissement collisionnel est un élargissement homogène.

La valeur de τ_{col} dépend de la section efficace σ_{col} des collisions provoquant une variation de phase, de la vitesse u du mouvement thermique des molécules et de la densité n du gaz :

$$\tau_{col} = 1/n\langle u\sigma_{col}\rangle, \tag{2.32}$$

où les chevrons désignent la moyenne sur la vitesse. Dans les estimations simples, on peut poser que u est la vitesse thermique moyenne u_0 : $1/\tau_{col} = nu_0\sigma_{col}$. Dans chaque cas particulier, il faut procéder à la détermination expérimentale de σ_{col}.

Pour l'électronique quantique, le fait que τ_{col} varie en raison inverse de la densité du gaz présente une très grande importance, puisque la largeur collisionnelle $\Delta\nu_{col}$ est alors proportionnelle à la pression du gaz et peut donc avoir des valeurs notables. Par exemple, pour le laser à CO_2 que nous avons déjà cité, le taux d'accroissement de la largeur de la raie, résultant de l'accroissement du nombre d'actes de collision avec la croissance de la pression, est égal à 4—8 MHz/torrs (suivant le partenaire collisionnel). Lorsque la pression totale dans un laser à CO_2 est égale à 10—15 torrs, la largeur collisionnelle homogène est plus grande que la largeur inhomogène par effet Doppler.

Pour conclure cette leçon, on notera que dans certains cas on doit tenir compte de la largeur dite de passage. En spectroscopie des faisceaux atomiques (et moléculaires), le temps de passage du jet de particules à travers

la région de l'espace où règne un champ électromagnétique peut être petit. De toute évidence, au temps moyen d'interaction τ_{pass} du faisceau avec le champ doit correspondre un élargissement homogène de la raie spectrale

$$\Delta\nu_{\text{pass}} = 1/2\pi\tau_{\text{pass}}. \tag{2.33}$$

Troisième leçon. **L'AMPLIFICATION**

Absorption et amplification. Milieu actif. Section efficace d'absorption. Effet de saturation. Densité du flux d'énergie d'un rayonnement saturant. Régime d'impulsion, énergie de saturation.

Un système quantique à l'équilibre absorbe l'énergie du rayonnement extérieur. Cela signifie que quoique les probabilités, rapportées à une particule, des transitions stimulées de haut en bas (avec émission d'énergie) et de bas en haut (avec absorption d'énergie) soient égales, le nombre total de transitions dirigées des niveaux inférieurs vers les niveaux supérieurs est plus grand que le nombre de transitions évoluant en sens inverse, et cela pour la raison que les niveaux inférieurs sont plus peuplés.

En effet, la variation de l'énergie du champ de rayonnement extérieur dans l'unité de volume du système quantique est déterminée par la différence des énergies émises et absorbées lors des transitions individuelles évoluant de haut en bas et de bas en haut. Comme la puissance émise est égale à $n_2 W_{21} h\nu$ et la puissance absorbée à $n_1 W_{12} h\nu$, le taux de variation de la densité d'énergie doit être égal, conformément à (1.2), (1.3), (1.10) et (2.20), à

$$\frac{d\varrho}{dt} = \left(\frac{n_2}{g_2} - \frac{n_1}{g_1}\right) \frac{g_1 2 B_{12} h\nu\varrho}{\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.1}$$

A l'état d'équilibre thermodynamique et conformément à la distribution de Boltzmann (1.4), ce taux est négatif. L'énergie du champ extérieur est donc absorbée par le système quantique. On verra plus tard que lorsqu'une quantité d'énergie tant soit peu notable est absorbée dans le champ extérieur, les populations n_2 et n_1 varient, ce qui entraîne une variation du taux d'absorption d'énergie. Pour le moment on négligera cette forte influence du champ sur les substances en raison de l'existence de processus de relaxation qui ramènent les particules sur les niveaux inférieurs avec une vitesse grande devant $d\varrho/dt$; c'est ce qui assure la continuité du processus d'absorption de l'énergie du rayonnement électromagnétique extérieur et la conversion de cette énergie en chaleur.

Donc, à l'état d'équilibre thermodynamique, $d\varrho/dt < 0$. Pour que l'énergie du rayonnement émis puisse augmenter, il faut que soit vérifiée la condition

$$n_2/g_2 > n_1/g_1. \tag{3.2}$$

En l'absence de dégénérescence, cela signifie que la population du niveau supérieur doit être plus grande que celle du niveau inférieur. En cas de dégénérescence, le nombre de particules par état non dégénéré du niveau supérieur doit dépasser le nombre de particules occupant chaque état non dégénéré du niveau inférieur.

Il s'ensuit qu'une augmentation de la densité d'énergie du champ d'émission extérieur ne peut avoir lieu que dans un système quantique où la distribution d'équilibre des populations est perturbée dans un sens tel que les états supérieurs sont plus peuplés que les états inférieurs, donc lorsque la distribution des populations est intervertie.

Les systèmes de particules quantiques dans lesquels il existe au moins deux niveaux d'énergie, tels que le niveau de plus grande énergie (niveau supérieur) est peuplé plus fortement que le niveau inférieur, sont appelés systèmes à population inversée ou parfois systèmes à température négative. L'introduction de ce dernier terme est une conséquence formelle de l'application de la distribution de Boltzmann aux systèmes hors d'équilibre à population inversée. En effet, la formule (1.4) de la distribution de Boltzmann montre que pour $E_2 > E_1$ la condition $n_2/g_2 > n_1/g_1$ est automatiquement vérifiée si l'on pose $T < 0$.

Ce qui nous importe est que les systèmes à population inversée sont des systèmes à absorption négative, donc susceptibles d'amplification. Pour un rayonnement qui se propage sous forme d'une onde progressive suivant la direction z avec la vitesse c, le coefficient d'absorption α est défini par

$$\alpha = -\frac{1}{I}\frac{dI}{dz}, \tag{3.3}$$

où I désigne l'intensité (densité de puissance) du rayonnement [W/cm^2]. Puisque $I = \text{const}\cdot\varrho$ et $dz = c\,dt$, on a

$$\alpha = -\frac{1}{c\varrho}\frac{d\varrho}{dt}. \tag{3.4}$$

On tire de (3.1)

$$\alpha = \left(\frac{n_1}{g_1} - \frac{n_2}{g_2}\right)\frac{g_1 2B_{12}h\nu}{c\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.5}$$

Si la condition $n_2/g_2 > n_1/g_1$ est vérifiée, le coefficient $\alpha < 0$, ce qui signifie que l'amplification correspond, comme de juste, à une absorption négative.

En raison des propriétés de l'émission stimulée, l'amplification résultant d'une inversion des populations est cohérente. Dans le cas d'une propagation dans un milieu à absorption négative, l'amplitude du champ croît suivant une loi exponentielle avec un indice (incrément) d'amplification égal à $\alpha/2$, i.e. à

$$\left(\frac{n_2}{g_2} - \frac{n_1}{g_1}\right)\frac{g_1 B_{12}h\nu}{c\pi\Delta\nu_L} \tag{3.6}$$

Indiquons à toute fin utile la valeur du rapport entre l'intensité E du champ électrique d'une onde électromagnétique et l'intensité I de cette dernière. Dans le cas d'une polarisation rectiligne du champ de l'onde

$$E[\mathrm{V/cm}] = 27\sqrt{I[\mathrm{W/cm^2}]}\ , \tag{3.7a}$$

et dans le cas d'une polarisation circulaire

$$E[\mathrm{V/cm}] = 19\sqrt{I[\mathrm{W/cm^2}]}\ . \tag{3.7b}$$

Pour que l'amplification soit possible, i.e. pour que le signe de l'absorption soit inversé, il faut que soit assurée une inversion de population, et pour cela, il faut disposer d'une action extérieure supplémentaire. Quel que soit le mécanisme concret de l'inversion de population, cette action extérieure doit pouvoir contrecarrer les processus qui tendent à rétablir la différence d'équilibre des populations. Pour s'opposer au rétablissement de la différence d'équilibre des populations, il faut dépenser de l'énergie — de l'énergie dite de pompage, qui est fournie par une source d'alimentation extérieure.

L' ensemble des particules quantiques, où se trouve réalisée une inversion de population et qui constitue un milieu où la propagation d'un rayonnement se caractérise par des pertes d'énergie négatives, est appelé milieu actif.

Considérons plus en détail la question du coefficient d'absorption dans le cas de l'équilibre thermodynamique, dans un système à deux niveaux d'énergie. Conformément à la loi de distribution de Boltzmann, pour un système à deux niveaux se trouvant à la température T,

$$\alpha = n\,\frac{g_1(1 - \exp[-h\nu/kT])}{g_1 + g_2\exp[-h\nu/kT]}\,\frac{2B_{12}h\nu}{c\pi\Delta\nu_L}, \tag{3.8}$$

où $n = n_1 + n_2$ est la densité du nombre total de particules occupant les deux niveaux d'énergie. Dans la gamme des ondes radio, on a généralement $h\nu \ll kT$, et par suite

$$\alpha = n\,\frac{g_1}{g_1 + g_2}\,\frac{(h\nu)^2}{kT}\,\frac{2B_{12}}{c\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.9}$$

Dans la gamme optique, $h\nu \gg kT$, et par suite

$$\alpha = nh\nu\,\frac{2B_{12}}{c\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.10}$$

Signalons qu'à la température de 300 K l'égalité $h\nu = kT$ est réalisée pour une longueur d'onde de 48 μm (la fréquence correspondante est égale à 6250 GHz ou 207 cm^{-1}).

On peut écrire la relation (3.10) sous une forme différente. En remar-

quant que $g_1 B_{12} = g_2 B_{21}$ et $A_{21} = 8\pi\nu^2 h\nu B_{21}/c^3$, récrivons (3.10) comme suit

$$\alpha = n \frac{g_2}{g_1} \frac{c^2}{4\pi\nu^2} \frac{A_{21}}{\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.11}$$

Comme $c/\nu = \lambda$ et $A_{21} = 1/\tau_0$, τ_0 étant la durée de vie naturelle (spontanée, radiative) de la particule sur le niveau supérieur, on écrira

$$\alpha = n \frac{g_2}{g_1} \frac{\lambda^2}{4\pi} \frac{1}{\pi\Delta\nu_L\tau_0}. \tag{3.12}$$

Comme le produit $\Delta\nu_L\tau_0$ n'a pas de dimension, il est possible de caractériser les propriétés absorbantes de la particule à l'aide d'une section efficace d'interaction de la particule avec un champ électromagnétique de résonance. Cette section efficace est appelée section efficace d'absorption et on la désigne par la lettre σ. Par définition,

$$\alpha = n\sigma. \tag{3.13}$$

Il résulte alors de (3.12) (voir aussi (3.10)) que

$$\sigma = \frac{g_2}{g_1} \frac{\lambda^2}{2\pi} \frac{1}{2\pi\Delta\nu_L\tau_0} = h\nu \frac{2B_{12}}{c\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.14}$$

Puisque $2\pi\Delta\nu_L$ est toujours plus grand que $1/\tau_0$, la section efficace d'absorption est toujours plus petite que $\lambda^2/2\pi$ (beaucoup plus petite s'il s'agit de la gamme optique). Les valeurs de σ varient largement (10^{-12} à $10^{-24}\,\text{cm}^2$) suivant la gamme spectrale et la nature de la particule quantique.

Dans ce qui précède, il était question de ce qu'on appelle coefficient d'absorption linéaire ou coefficient d'absorption de petits signaux, qu'on utilise lorsque la valeur de α ne dépend pas de l'intensité du signal. Le fait que le coefficient d'absorption α ne dépend pas de l'intensité du rayonnement absorbé exprime la loi de Bouguer-Lambert-Baer, bien connue en optique. Dans notre approche, on a obtenu cette loi en supposant que le rayonnement absorbé ne modifiait pas le nombre de particules distribuées parmi les niveaux d'énergie à l'état d'équilibre thermodynamique.

Or le rayonnement absorbé par le système de particules perturbe nécessairement l'équilibre thermique. Lorsque la probabilité des transitions stimulées par le champ extérieur devient comparable à la probabilité des transitions de relaxation, la distribution d'équilibre des populations est notablement perturbée. Dans ces conditions, la part relative de l'énergie absorbée par le système diminue, le coefficient d'absorption baisse et on aboutit à l'effet de saturation. Il est évident qu'à la limite où l'intensité du champ est tellement grande que la probabilité des transitions stimulées est plus grande que celle des transitions de relaxation, on arrive à la satura-

tion totale pour laquelle la différence

$$n_1/g_1 - n_2/g_2 = 0. \tag{3.15}$$

Lorsque $n_1/g_1 = n_2/g_2$, on arrive au blanchissement du système ; ce dernier devient alors transparent pour la radiation de résonance, il n'y a ni absorption ni amplification, i.e. $\alpha = 0$.

Pendant longtemps la loi de Bouguer-Lambert-Baer ou les assertions analogues étaient considérées comme des axiomes intangibles. S. Vavilov fut le premier qui, bien avant l'apparition des lasers, avança et justifia l'idée que l'absorption pourrait décroître si l'intensité du rayonnement incident devenait assez grande. L'allure non linéaire du processus d'absorption d'une lumière de grande intensité incita Vavilov à introduire le terme « optique non linéaire ». Ce terme commença à être largement utilisé après l'avènement des lasers et désigne aujourd'hui un nouveau chapitre de la Physique.

Etudions la variation de la population d'un système à deux niveaux d'énergie, provoquée par l'action d'un champ électromagnétique de résonance, par les transitions spontanées et de relaxation. On sait que les processus de relaxation ont pour résultat un échange d'énergie entre le système des particules considérées et les vibrations thermiques, cet échange assurant l'équilibre thermique du système tout entier. Il a déjà été signalé que ce sont précisément les interactions de relaxation (conjointement avec l'émission spontanée, lorsque celle-ci est notable) qui assurent l'établissement d'une distribution d'équilibre des populations et créent ainsi les conditions nécessaires à l'absorption ultérieure de l'énergie de rayonnement.

Ecrivons les équations d'évolution des populations n_1 et n_2 des deux niveaux. Ecrivons d'abord la loi de conservation

$$n_1 + n_2 = n. \tag{3.16}$$

La variation de la densité du nombre de particules n_2 peuplant le niveau supérieur est donnée par l'équation

$$\frac{dn_2}{dt} = -\left(w_{21} + \frac{1}{\tau_0}\right)n_2 + w_{12}n_1 - W_{21}n_2 + W_{12}n_1. \tag{3.17}$$

Le premier terme exprime la perte de particules par le deuxième niveau due au dépeuplement spontané (probabilité $1/\tau_0$) et à la relaxation (probabilité w_{21}) ; le deuxième terme décrit l'occupation de relaxation du deuxième niveau par les particules quittant le premier niveau (probabilité w_{12}) ; le troisième et le quatrième terme décrivent les transitions stimulées $1 \rightleftarrows 2$.

En écrivant W_{12} sous la forme $2B_{12}\varrho/\pi\Delta\nu_L$, en remarquant que $g_1B_{12} = g_2B_{21}$ et en substituant $n_1 = n - n_2$, on obtient

$$\frac{dn_2}{dt} = -\left(\frac{1}{\tau} + \frac{g_1 + g_2}{g_2}\, 2B_{12}\frac{\varrho}{\pi\Delta\nu_L}\right)n_2 + \left(w_{12} + 2B_{12}\frac{\varrho}{\pi\Delta\nu_L}\right)n, \tag{3.18}$$

où on a utilisé la notation

$$\tau = \frac{1}{w_{21} + w_{12} + 1/\tau_0} \tag{3.19}$$

pour désigner le temps de relaxation efficace des populations. L' équation (3.18) montre qu'en l'absence de champ extérieur τ est le temps de relaxation du système.

Dans les conditions stationnaires ($dn_2/dt = 0$)

$$n_2 = \frac{w_{12}\tau + 2B_{12}\varrho\tau/\pi\Delta\nu_L}{1 + (g_1 + g_2)2B_{12}\varrho\tau/g_2\pi\Delta\nu_L}\, n. \tag{3.20}$$

Pour $\varrho \to \infty$

$$n_2 = \frac{g_2}{g_1 + g_2}\, n. \tag{3.21}$$

Puisque $n_1 = n - n_2$, on a

$$n_1 = \frac{g_1}{g_1 + g_2}\, n, \tag{3.22}$$

ce qui montre qu'à la multiplicité de dégénérescence près, les populations des niveaux supérieur et inférieur s'égalisent. Le système est totalement saturé.

En l'absence de champ de rayonnement ($\varrho = 0$)

$$n_2^0 = w_{12}\tau n = \frac{w_{12}}{w_{12} + w_{21} + 1/\tau_0}\, n \tag{3.23}$$

et

$$n_1^0 = \frac{w_{21} + 1/\tau_0}{w_{12} + w_{21} + 1/\tau_0}\, n. \tag{3.24}$$

Étant donné qu'à l'équilibre les différences des populations satisfont à la distribution de Boltzmann (1.4), les probabilités des processus de relaxation évoluant de haut en bas et de bas en haut doivent vérifier la condition

$$\frac{w_{12}}{w_{21} + 1/\tau_0} = \frac{g_2}{g_1} \exp\left[-\frac{E_2 - E_1}{kT}\right]. \tag{3.25}$$

Si la dégénérescence des niveaux d'énergie E_2 et E_1 est la même, la probabilité des transitions de relaxation évoluant de haut en bas est toujours plus grande que celle des processus évoluant en sens inverse. Aux fréquences optiques, lorsque $E_2 - E_1 \gg kT$, la probabilité des transitions de relaxation de bas en haut est très petite. Aux fréquences radio ($E_2 - E_1 \ll kT$), w_{12} n'est qu'un peu plus petit que w_{21} (aux fréquences radio on néglige $1/\tau_0$).

Reprenons le cas de la saturation. En règle générale, on a affaire non pas à la densité volumique ϱ de l'énergie, mais à la densité I du flux d'énergie de rayonnement, autrement dit à l'intensité de rayonnement I. Comme

$I = \varrho c$, l'expression suivante

$$n_2 = \frac{w_{12}\tau + I2B_{12}\tau/c\pi\Delta\nu_L}{1 + (g_1 + g_2)I2B_{12}\tau/g_2c\pi\Delta\nu_L}\, n \tag{3.26}$$

permet d'introduire une caractéristique de saturation efficace

$$I_S = \frac{1}{4}\,\frac{c\pi\Delta\nu_L}{B_{12}\tau} \tag{3.27}$$

qui représente en somme une densité de flux d'énergie ou une intensité de saturation. La formule (3.14) permet d'établir une relation entre I_S et la section d'absorption à la résonance σ :

$$I_S = h\nu/2\sigma\tau. \tag{3.28}$$

D'autre part, conformément à (3.5), la valeur de l'absorption ou de l'amplification à la résonance est donnée par la formule

$$z = n_2/g_2 - n_1/g_1. \tag{3.29}$$

En remarquant que $n_2 = n - n_1$, et donc $z = n_2(g_1 + g_2)/g_1g_2 - n_1/g_1$, on tire de (3.26) une expression de z simple :

$$z = \frac{z_0}{1 + (g_1 + g_2)I/2g_2I_S}, \tag{3.30}$$

où z_0 désigne la différence correspondante des populations des niveaux en l'absence de champ extérieur, i.e. pour $I = 0$.

On aura à utiliser souvent la formule (3.30). Sa signification est assez évidente. Lorsque l'intensité d'éclairage croît, la différence initiale entre les populations diminue. Le taux caractéristique de cette variation est imposé par la valeur de I_S. Lorsque l'intensité d'éclairage atteint la valeur I_S, la différence initiale entre les populations diminue de deux fois. Pour $I \ll I_S$, on peut négliger l'effet de saturation.

La quantité I_S définie par (3.28) a une signification physique simple : le produit de l'intensité de l'émission par la section d'absorption, mesuré en unités $h\nu$, c'est-à-dire la quantité $I\sigma/h\nu$, représente, dans le cas d'un éclairage continu, le taux moyen des actes d'absorption stimulée. Lorsque ce taux, qui augmente avec I, devient égal au taux du dépeuplement de relaxation $1/\tau$ du niveau supérieur ($g_1 = g_2$), la saturation devient notable.

Il importe de noter que les considérations développées ci-dessus s'appliquent aux raies d'absorption à élargissement homogène qui se saturent en entier lorsque l'intensité d'éclairage augmente. Dans le cas d'un élargissement inhomogène, par effet Doppler par exemple, il faut procéder à une étude spéciale beaucoup plus compliquée.

Notons encore qu'on utilise parfois, à la place de l'intensité de saturation, la grandeur inverse

$$S = 1/I_S \tag{3.31}$$

qui porte le nom de facteur de saturation. L'intensité de saturation I_S a une signification physique plus concrète.

L'effet de saturation joue un rôle important en électronique quantique. La saturation diminue le coefficient d'absorption des systèmes absorbant par résonance (sans inversion de population) et provoque leur blanchissement, chose parfois fort utile. La saturation diminue le gain des systèmes inversés, ce qui est bien souvent nocif. La saturation est l'effet non linéaire qui impose une limite à l'intensité d'émission des lasers. Enfin, dans les systèmes à plusieurs niveaux d'énergie, la saturation de l'une des transitions de résonance peut provoquer l'inversion de population d'une autre transition. Cette dernière question sera ultérieurement examinée plus en détail.

L'ordre de grandeur de l'intensité de saturation dépend des paramètres de la transition considérée d'une particule quantique donnée. Dans la région visible du spectre, pour $\tau = 10^{-6}$ s et $\sigma = 10^{-16}\,\text{cm}^2$, I_S est égal à 1—2 kW/cm^2.

Jusqu'à présent, on n'a envisagé que le régime continu. En électronique quantique, on utilise largement le régime impulsionnel (« tout ou rien »). On peut considérer que le régime est impulsionnel lorsque la durée d'action du rayonnement extérieur sur le système quantique est petite par rapport au temps de relaxation caractéristique de ce système. Plus exactement, le régime continu est un régime de fonctionnement (régime d'émission ou d'éclairage) dont la durée est notablement supérieure au temps de relaxation. Tout autre régime est impulsionnel. Dans le cas d'un éclairage par impulsions, l'effet de saturation doit être caractérisé par l'énergie de saturation.

Reprenons l'analyse de l'équation (3.18). La solution de cette équation en régime impulsionnel $\varrho = \varrho(t)$ fournit la dépendance correspondante $n_2(t)$. Pour simplifier, on considérera le cas optique : $w_{12} = 0$ et $n_2(0) = 0$. Introduisons dès maintenant l'intensité d'éclairage $I = \varrho c$ et tenons compte de l'expression (3.27) de l'intensité de saturation I_S en régime stationnaire. On arrive finalement à une expression simple :

$$\frac{dn_2}{dt} = \frac{1}{2}\frac{I}{I_S}\frac{n}{\tau} - \left(1 + \frac{g_1 + g_2}{g_2}\frac{I}{I_S}\right)\frac{n_2}{\tau}, \tag{3.32}$$

où $I = I(t)$. La solution de cette équation différentielle linéaire de premier ordre est connue. Pour une condition initiale nulle ($n_2(0) = 0$) et en introduisant les notations

$$Q(t) = \left(1 + \frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{I(t)}{I_S}\right)\frac{1}{\tau}, \tag{3.33}$$

$$R(t) = \frac{I(t)n}{2I_S\tau}, \tag{3.34}$$

on peut écrire l'expression de $n_2(t)$ sous la forme

$$n_2(t) = \left\{\exp\left[-\int_0^t Q(z)dz\right]\right\}\left\{\int_0^t R(z)\exp\left[\int_0^z Q(x)dx\right]dz\right\}. \tag{3.35}$$

D'autre part,

$$\int_0^t Q(z)dz = \frac{t}{\tau} + \frac{1}{2}\frac{g_1 + g_2}{g_2}\int_0^t \frac{I(z)}{I_S\tau}dz. \tag{3.36}$$

L'intégrale $\int_0^t I(z)dz$, qui représente la dose massique de l'énergie d'éclairage reçue par le système à l'instant t (système à deux niveaux d'énergie), est homogène à la densité d'énergie d'éclairage reçue au cours du temps t, qu'on mesure en joules par cm^2 ; c'est ce qui la distingue de la densité du flux d'énergie (i.e. de l'intensité) d'éclairage qu'on mesure en watts par cm^2.

Utilisons les notations

$$F(t) = \int_0^t I(z)dz, \tag{3.37}$$

$$F_S = I_S\tau, \tag{3.38}$$

où F_S représente, bien entendu, la densité de l'énergie de saturation. Compte tenu de (3.36) à (3.38), l'expression de $n_2(t)$ se laisse écrire comme suit :

$$n_2(t) = \frac{n}{2}\exp\left[-\frac{t}{\tau} + \frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{F(t)}{F_S}\right]\int_0^t \exp\left[\frac{z}{\tau} + \frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{F(z)}{F_S}\right]\frac{I(z)}{F_S}dz. \tag{3.39}$$

Pour pouvoir poursuivre notre analyse, il est nécessaire de préciser la forme de la fonction $I(t)$. Si l'on envisage des impulsions de courte durée $\tau_{imp} \ll \tau$, on pourra poser, dans le calcul de $n_2(\tau_{imp})$, que l'intensité d'éclairage reste constante et égale à I_0 pendant l'impulsion. Dans ces conditions, $F(\tau_{imp}) = F_{imp} = I_0\tau_{imp}$ a le sens de la densité d'énergie de l'impulsion ; $F(z) = I_0 z$ et $I(z) = I_0$ pour $0 \leqslant z \leqslant \tau_{imp}$. Finalement

$$n_2(\tau_{imp}) = n_2^{imp} = nI_0\left\{1 - \exp\left[-\frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{F_{imp}}{F_S} - \frac{\tau_{imp}}{\tau}\right]\right\} \times$$

$$\times\left\{2I_S\left(1 + \frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{I_0}{I_S}\right)\right\}^{-1}. \tag{3.40}$$

Le résultat obtenu se distingue du cas stationnaire décrit par (3.26) à (3.30) par le premier facteur entre parenthèses caractérisant l'absence d'une relaxa-

tion efficace pendant le temps où s'exerce l'action de l'impulsion lumineuse. Une augmentation de l'énergie de l'impulsion fait apparaître l'effet de saturation en ce sens qu'une croissance de F_{imp} ne s'accompagne plus d'une croissance de n_2, tout simplement parce que toutes les particules sont déjà passées du niveau 1 sur le niveau 2 et que la relaxation inverse n'arrive pas à se produire pendant le temps τ_{imp}.

La comparaison de (3.26) et de (3.40) montre qu'en régime impulsionnel la condition de la saturation totale

$$F_{imp} \gg F_S \tag{3.41}$$

est qualitativement différente de la condition de saturation totale en régime continu

$$I \gg I_S. \tag{3.42}$$

C'est en se fondant sur ces considérations qu'on a pu introduire par la formule (3.38) la densité de l'énergie de saturation en régime impulsionnel

$$F_S = I_S\tau = h\nu/2\sigma. \tag{3.43}$$

Remarquons que dans le cas de signaux suffisamment intenses, lorsque la condition (3.42) est déjà vérifiée pour l'intensité impulsionnelle, n_2 est donné par la formule simple :

$$n_2^{imp} = n\left\{1 - \exp\left[-\frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{F_{imp}}{F_S}\right]\right\}\frac{g_2}{g_1 + g_2}. \tag{3.44}$$

Connaissant n_2, on peut calculer n_1 et $n_2 - n_1$. Lorsque la formule (3.44) est valable,

$$z = \frac{n_2}{g_2} - \frac{n_1}{g_1} = z_0 \exp\left[-\frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{F_{imp}}{F_S}\right], \tag{3.45}$$

où z_0 désigne, comme dans la formule (3.31), la différence des populations correspondante en champ extérieur nul, i.e. pour $F_{imp} = 0$. La différence entre (3.45) et (3.31) tient essentiellement au caractère de la saturation.

Quatrième leçon. LES COEFFICIENTS D'EINSTEIN ET L'ÉLÉMENT MATRICIEL DE L'OPÉRATEUR DE TRANSITION

Fonctions d'onde des états stationnaires. Equation de Schrödinger en présence de perturbations. Première approximation de la théorie des perturbations. Superposition des fonctions d'onde des états stationnaires. Probabilité de transition. Calcul des coefficients d'Einstein pour les transitions stimulées dans un système à deux niveaux. Elément de matrice de l'opérateur moment dipolaire d'une transition. Oscillations de la population du niveau supérieur et fréquence de Rabi.

Dans ce qui précède, on a établi une relation entre la section efficace d'absorption, le gain, l'intensité de saturation et le coefficient d'Einstein, que nous avons défini par des considérations de thermodynamique.

Il importe maintenant de faire appel à la mécanique quantique, d'une part, pour bien cerner les concepts quantomécaniques qui s'appliquent à l'électronique quantique et, d'autre part, pour disposer de méthodes et d'artifices de calcul des probabilités des transitions, des sections efficaces d'absorption, etc.

Il a été indiqué que pour procéder à l'étude du système « particule-champ de rayonnement » on le divisait en deux parties : particule quantique et champ de rayonnement classique. L' énergie du système est scindée, elle, en trois parties : énergie interne de la particule, énergie du champ de rayonnement et énergie d'interaction de la particule avec le champ. L'interaction est alors considérée comme la perturbation d'une partie du système provoquée par l'autre partie, plus précisément comme la perturbation de la particule par le champ de rayonnement.

On sait que les micro-objets sont décrits par des fonctions Ψ satisfaisant à l'équation de Schrödinger

$$j\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \hat{H}\Psi, \tag{4.1}$$

où $\hat{H}$ est l'opérateur énergie.

L'hamiltonien du système considéré est de la forme

$$H = H_0 + H', \tag{4.2}$$

où H_0 est l'énergie totale du champ et de la particule pris séparément et H' l'énergie de leur interaction mutuelle ; cette dernière caractérise la perturbation de l'énergie interne de la particule par le champ. On peut toujours diviser l'énergie de cette façon. On considérera ici le cas particulier où l'énergie d'interaction H' est petite par rapport à l'énergie totale H_0 des composants non perturbés du système. Comme la valeur de H_0 est déterminée par les énergies de liaison entre les constituants de notre molécule (atome, ion, etc.), cette hypothèse convient bien aux cas d'interactions des microparticules avec des champs d'une intensité raisonnable.

Les résultats que l'on obtient en supposant que H' est petit devant H_0 correspondent à la première approximation de la théorie des perturbations.

Considérons d'abord un système non perturbé, présentant des niveaux d'énergie E_n et caractérisé par les fonctions d'onde Ψ_n. Puisque en l'absence d'interaction mutuelle la particule et le champ de rayonnement peuvent subsister dans des états donnés pendant un temps infiniment long, ces états sont des états stationnaires. Les fonctions d'onde Ψ_n des états stationnaires présentent certaines particularités. On peut les représenter sous la forme

$$\Psi_n = \psi_n \exp[-jE_n t/\hbar], \tag{4.3}$$

où les fonctions ψ_n ne dépendent que des coordonnées spatiales et vérifient l'équation stationnaire de Schrödinger (équation indépendante du temps)

$$\psi_n(x)E_n = \hat{H}_0(x)\psi_n(x). \tag{4.4}$$

On sait que cette équation, appliquée à des systèmes quantiques limités, ne possède des solutions que pour certaines valeurs de E_n ; c'est ce qui détermine la quantification des niveaux d'énergie des systèmes ne pouvant s'étendre à l'infini. Autrement dit, la quantification de l'énergie découle automatiquement de l'équation stationnaire de Schrödinger pour les systèmes limités.

Aux niveaux d'énergie E_n correspondent les fonctions d'onde ψ_n, qui sont continues, lisses et orthonormées :

$$\int \psi_m^* \psi_n dxdydz = \begin{cases} 1, & m = n ; \\ 0, & m \neq n. \end{cases} \tag{4.5}$$

Ces propriétés expriment l'indépendance mutuelle des états stationnaires. A un instant déterminé, un système non perturbé ne peut se trouver que dans un seul état.

La situation change dès qu'apparaissent les interactions. La fonction d'onde correspondante doit alors vérifier l'équation de Schrödinger

$$j\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi' = (\hat{H}_0 + \hat{H}')\Psi'. \tag{4.6}$$

Dans le cas général cette équation n'a pas de solution, mais compte tenu de la petitesse de l'énergie d'interaction H' par rapport à l'énergie H_0 du système non perturbé, on arrive à trouver une solution en développant la fonction d'onde Ψ' du système perturbé en une série dont les termes sont des solutions de l'équation de Schrödinger non perturbée

$$j\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \hat{H}_0 \Psi \tag{4.7}$$

et sont donc les fonctions Ψ des états stationnaires.

On se contentera de considérer à nouveau des particules ne possédant que deux niveaux d'énergie, quoiqu'il n'existe pas réellement de systèmes à deux niveaux. Or, lorsque l'interaction de la particule avec le champ présente un caractère de résonance et que les raies sont étroites, le système à deux niveaux constitue une approximation satisfaisante.

Le système à deux niveaux possède deux états stationnaires, i.e. deux fonctions Ψ stationnaires : Ψ_1 et Ψ_2. On doit donc chercher une solution de (4.6) qui soit de la forme

$$\Psi' = a\Psi_1 + b\Psi_2. \tag{4.8}$$

Si, avant d'être soumise à la perturbation, la particule occupait le niveau inférieur d'énergie E_1, on a $a = 1$ et $b = 0$; dans le cas contraire, on aurait $a = 0$, $b = 1$. Dans le cas général, les coefficients a et b dépendent du temps: $a = a(t)$, $b = b(t)$. Lorsque la particule et le champ sont en interaction mutuelle, il se produit un échange d'énergie et l'état énergétique de

la particule dépend du temps. Au bout d'un certain temps d'interaction mutuelle, il existe une probabilité finie pour que la particule se trouve dans un état stationnaire différent de son état initial. Supposons, par exemple, que le système qui se trouvait avant interaction dans l'état 1 et était caractérisé par la fonction Ψ_1 soit caractérisé à un instant ultérieur par la fonction Ψ_2. On peut affirmer alors qu'une transition a eu lieu entre les niveaux 1 et 2 et que la probabilité de cette transition est égale à $|b(t)|^2 = b(t)b(t)^*$.

Par conséquent, on doit substituer (4.8) dans l'équation (4.6). Après arrangement et compte tenu de ce que (4.7) s'applique à Ψ_1 et Ψ_2, on obtient

$$j\hbar\Psi_1 \frac{\partial a}{\partial t} + j\hbar\Psi_2 \frac{\partial b}{\partial t} = a(t)\hat{H}'\Psi_1 + b(t)\hat{H}'\Psi_2. \qquad (4.9)$$

Multiplions cette équation par Ψ_2^* et intégrons sur tout l'espace. Compte tenu de ce que les fonctions sont orthonormées (4.5) et de ce qu'en vertu de (4.3)

$$\Psi_1 = \psi_1 \exp\left[-\frac{jE_1t}{\hbar}\right], \quad \Psi_2 = \psi_2 \exp\left[-\frac{jE_2t}{\hbar}\right], \qquad (4.10)$$

on obtient

$$j\hbar \frac{db}{dt} = a(t)\int \psi_1\hat{H}'\psi_2^* \exp\left[-\frac{jE_1t}{\hbar} + \frac{jE_2t}{\hbar}\right] dxdydz + b(t)\int \psi_2\hat{H}'\psi_2^* dxdydz. \qquad (4.11)$$

Si l'on avait multiplié (4.9) par Ψ_1^*, on aurait obtenu une équation analogue pour da/dt.

Supposons maintenant qu'à l'instant $t = 0$ où on appliqua la perturbation, la particule se trouvait sur le niveau 1, i.e. $a(0) = 1$ et $b(0) = 0$. Si la durée de la perturbation est petite, on peut chercher une solution de (4.11) en admettant qu'on peut remplacer les fonctions $a(t)$ et $b(t)$ par leurs valeurs initiales. On trouve ainsi

$$j\hbar \frac{db}{dt} = \int \psi_1\hat{H}'\psi_2^* \exp\left[-\frac{j(E_1 - E_2)t}{\hbar}\right] dxdydz. \qquad (4.12)$$

Le second membre de cette équation contient l'intégrale $\int \psi_1\hat{H}'\psi_2^* dxdydz$ étendue à tout l'espace. Cette intégrale est connue sous le nom d'élément de matrice de l'opérateur d'interaction pour la transition $1 \to 2$.

Posons que l'énergie de perturbation H' soit due à l'interaction dipolaire de la particule avec un champ électromagnétique alternatif. En notant μ le moment dipolaire et $\mathbf{E}(\exp(j\omega t) + \exp(-j\omega t))$ le champ, l'énergie d'interaction est égale au produit scalaire de ces vecteurs :

$$H' = -\mu\mathbf{E}(\exp(j\omega t) + \exp(-j\omega t)). \qquad (4.13)$$

Admettons pour simplifier que les vecteurs μ et $\mathbf{E}$ sont parallèles. Dans

l'approximation dipolaire, l'opérateur d'interaction se transforme en opérateur moment $\hat{\mu}$. Pour le cas où $\boldsymbol{\mu}$ et $\mathbf{E}$ sont parallèles, son élément de matrice s'écrit

$$\int \psi_1 \hat{H}' \psi_2^* dx\,dy\,dz = -E(e^{j\omega t} + e^{-j\omega t}) \int \psi_1 \hat{\mu} \psi_2^* dx\,dy\,dz = -\langle \mu \rangle E(e^{j\omega t} + e^{-j\omega t}), \tag{4.14}$$

où la quantité $\langle \mu \rangle$ détermine l'élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire de la transition. On arrive ainsi à l'équation

$$\frac{db}{dt} = -\frac{1}{j\hbar} \langle \mu \rangle E(e^{j(\omega + \omega_0)t} + e^{j(\omega_0 - \omega)t}), \tag{4.15}$$

où $\omega_0 = (E_2 - E_1)\hbar$ est la fréquence de résonance de la transition. (On notera que dans les considérations de ce genre, il est d'usage d'utiliser la fréquence circulaire.) Lorsque la particule est soumise à l'action d'une fréquence ω, proche de la fréquence de résonance, le premier terme figurant dans les parenthèses oscille trop rapidement et on peut le négliger. On a alors

$$\frac{db}{dt} = -\frac{1}{j\hbar} \langle \mu \rangle E e^{j(\omega_0 - \omega)t}. \tag{4.16}$$

Cette équation est facile à intégrer entre 0 et t :

$$b(t) = \frac{\langle \mu \rangle E}{\hbar} \frac{e^{j(\omega_0 - \omega)t} - 1}{\omega_0 - \omega}. \tag{4.17}$$

La probabilité de la transition $1 \to 2$ est donnée par le carré du module $|b(t)|^2$:

$$|b(t)|^2 = \left(\frac{\langle \mu \rangle E}{\hbar}\right)^2 \left(\frac{\omega_0 - \omega}{2}\right)^{-2} \sin^2 \frac{\omega_0 - \omega}{2} t. \tag{4.18}$$

Cette expression montre qu'on n'obtient une probabilité notable de la transition que si la fréquence ω du champ extérieur est proche de ω_0, i.e. dans le cas d'une émission à la résonance.

Afin d'établir une relation entre la probabilité de transition et le coefficient d'Einstein B_{12} de la transition stimulée, il faut appliquer le résultat obtenu au cas du rayonnement thermique et tenir compte de la largeur spectrale de la transition. La quantité E^2 figurant dans la formule (4.18) est liée à la densité d'énergie du champ correspondant par une relation simple et bien connue : $\varrho = E^2/8\pi$. On avait considéré dans ce qui précède un champ électrique polarisé suivant l'axe du dipôle. Dans le cas du rayonnement thermique isotrope pour lequel a été effectuée l'analyse thermodynamique des coefficients d'Einstein, la densité d'énergie du champ le long de la direction choisie est égale au tiers de la densité d'énergie totale du

champ. Donc

$$E^2 = 8\pi\varrho/3. \tag{4.19}$$

La densité d'énergie du champ de rayonnement thermique est répartie sur le spectre de fréquences conformément à la formule de Planck. Or, on a établi la formule de $|b(t)|^2$ pour une force extérieure monochromatique. Pour trouver la probabilité de transition totale dans le champ de rayonnement thermique, on doit intégrer l'expression (4.18) sur toutes les fréquences du rayonnement thermique en supposant que l'expression (4.18) contient la densité spectrale d'énergie du champ $E_\nu^2 = 8\pi\varrho_\nu/3$, ϱ_ν étant donné par la formule de Planck (1.9). La probabilité de transition totale Π est donnée par l'expression

$$\Pi = \int_{-\infty}^{\infty} |b(t)|^2 d\nu = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\langle\mu\rangle^2}{\hbar^2} \frac{8\pi\varrho_\nu}{3} \frac{\sin^2 \pi(\nu_0 - \nu)t}{\pi^2(\nu_0 - \nu)^2} d\nu. \tag{4.20}$$

La fonction $\varrho(\nu)$ varie lentement tandis que $\sin^2 \pi(\nu_0 - \nu)t/\pi^2(\nu_0 - \nu)^2$ a l'allure d'une courbe de résonance ; on peut donc sortir ϱ_ν de sous le signe d'intégration :

$$\Pi = \frac{8\pi}{3} \frac{\langle\mu\rangle^2}{\hbar^2} \varrho_\nu \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sin^2 \pi(\nu_0 - \nu)t}{\pi^2(\nu_0 - \nu)^2} d\nu. \tag{4.21}$$

En posant $\pi(\nu_0 - \nu)t = x$, l'intégrale prend une forme bien connue : $\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sin^2 x}{x^2} dx = \pi$. Par conséquent,

$$\Pi = \frac{8\pi}{3} \frac{\langle\mu\rangle^2}{\hbar^2} \varrho_\nu t. \tag{4.22}$$

Cette expression montre que la probabilité de la transition stimulée par la perturbation est proportionnelle au temps t d'action de cette perturbation, ce qui est conforme au postulat d'Einstein sur les probabilités des transitions stimulées.

En introduisant la prababilité de transition par unité de temps :

$$W_{12} = \frac{\Pi}{t} = \frac{8\pi}{3} \frac{\langle\mu\rangle^2}{\hbar^2} \varrho_\nu, \tag{4.23}$$

et en identifiant cette expression avec le postulat d'Einstein (1.2) :

$$W_{12} = B_{12}\varrho_\nu, \tag{4.24}$$

on trouve l'expression définitive du coefficient d'Einstein B_{12} :

$$B_{12} = \frac{8\pi}{3} \frac{\langle\mu\rangle^2}{\hbar^2}. \tag{4.25}$$

En procédant de façon analogue on peut établir l'expression de B_{21} qui, dans le cas considéré du système à deux niveaux sans dégénérescence, est égale à B_{12}. Cette méthode ne permet pas de calculer la probabilité d'une transition spontanée.

Les résultats obtenus montrent que les valeurs des coefficients d'Einstein B_{12} et B_{21} sont déterminées par les éléments de matrice dipolaires $\langle \mu \rangle$, dont le calcul pour un grand nombre de configurations simples est réalisable par les méthodes de la mécanique quantique. Néanmoins, dans nombre de cas, on doit les déterminer par les méthodes expérimentales.

Indiquons pour information les expressions de B_{12} et B_{21} pour le cas de niveaux dégénérés :

$$B_{12} = \frac{8\pi}{3}\frac{1}{\hbar^2}\frac{F_{12}}{g_1}, \quad B_{21} = \frac{8\pi}{3}\frac{1}{\hbar^2}\frac{F_{21}}{g_2}, \tag{4.26}$$

où ce qu'on appelle force de la ligne de transition $F_{12} = F_{21} = F$ est égale à la somme des carrés des éléments de matrice du moment dipolaire de la transition entre les états non dégénérés α et β formant respectivement les niveaux 1 et 2 :

$$F = \sum_{\alpha,\beta} \langle \mu_{\alpha\beta} \rangle^2. \tag{4.27}$$

La relation entre le coefficient d'Einstein B_{12} et la caractéristique quantomécanique $\langle \mu \rangle^2$ de la transition ne s'applique, en toute rigueur, qu'hors de la résonance, lorsque les termes de résonance figurant dans les dénominateurs tels que $\omega_0 - \omega$ (cf. (4.17)) ne sont pas très petits. La petitesse de ces dénominateurs invalide la petitesse de la correction requise en théorie des perturbations. Mais ayant obtenu au premier ordre d'approximation de la théorie des perturbations l'expression (4.17) de $b(t)$, on intègre ensuite (4.20) sur toutes les fréquences du rayonnement de Planck, ce qui justifie intuitivement nos calculs. Mais si l'on veut étudier le cas où le système est soumis à l'action d'un champ de fréquence $\omega \approx \omega_{21} = \omega_0$, i.e. le cas

$$\omega_{21} - \omega = \delta \ll \omega_{21},\ \omega, \tag{4.28}$$

on doit refaire les calculs. Représentons de nouveau la fonction Ψ de l'état mixte d'un système à deux niveaux apparaissant sous l'action d'un champ de rayonnement sous la forme (4.8). Après substitution dans l'équation de Schrödinger (4.6), multiplication des résultats par les quantités conjuguées, intégration et réduction des termes semblables, on obtient les équations exactes de $a(t)$ et de $b(t)$:

$$j\hbar \frac{da}{dt} = V_{12}(t)b, \tag{4.29}$$

$$j\hbar \frac{db}{dt} = V_{21}(t)a, \tag{4.30}$$

où les éléments de matrice de l'opérateur de perturbation $\hat{V}$ sont de la forme (analogue à (4.12)) :

$$V_{12}(t) = \int \Psi_1^* \hat{V} \Psi_2 dxdydz = V \exp \frac{j(E_1 - E_2)t}{\hbar}, \tag{4.31}$$

$$V_{21}(t) = \int \Psi_2^* \hat{V} \Psi_1 dxdydz = V \exp \left[- \frac{j(E_1 - E_2)t}{\hbar} \right]. \tag{4.32}$$

Dans le cas d'une interaction dipolaire de la forme (4.13), i.e. pour

$$\hat{V} = -\hat{\mu} E(e^{j\omega t} + e^{-j\omega t}), \tag{4.33}$$

les éléments de matrice s'écrivent

$$V_{12}(t) = -\langle \mu \rangle E(e^{j(\omega + \omega_{21})t} + e^{j(\omega_{21} - \omega)t}), \tag{4.34}$$

$$V_{21}(t) = -\langle \mu \rangle E(e^{j(\omega + \omega_{12})t} + e^{j(\omega_{12} - \omega)t}). \tag{4.35}$$

Comme dans (4.14) on a ici

$$\langle \mu \rangle = \langle \mu_{12} \rangle = \langle \mu_{21} \rangle = \int \Psi_2^* \hat{\mu} \Psi_1 dxdydz \tag{4.36}$$

et, en outre, on a introduit les fréquences

$$\omega_{21} = \frac{E_2 - E_1}{\hbar} = -\omega_{12} = -\frac{E_1 - E_2}{\hbar}. \tag{4.37}$$

En supposant comme précédemment que seule importe la fréquence δ (cf. (4.28)) et en utilisant la notation

$$-\langle \mu \rangle E = F, \tag{4.38}$$

on tire de (4.34) et (4.35) le système d'équations

$$j\hbar \frac{da}{dt} = Fbe^{j\delta t}, \quad j\hbar \frac{db}{dt} = Fae^{-j\delta t}. \tag{4.39}$$

Après substitution de $c = be^{j\delta t}$ dans (4.39) et élimination de a, on obtient une équation linéaire de second ordre à coefficients constants, i.e. l'équation de l'oscillateur harmonique :

$$\frac{d^2c}{dt^2} - j\delta \frac{dc}{dt} + \frac{F^2}{\hbar^2} c = 0. \tag{4.40}$$

La solution de (4.40) est bien connue. En utilisant la notation

$$\Omega = \sqrt{\delta^2/4 + F^2/\hbar^2}, \tag{4.41}$$

on trouve

$$b_1 = A \exp\left[-j\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right)t\right], \quad b_2 = B \exp\left[-j\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right)t\right], \tag{4.42}$$

$$a_1 = \frac{\hbar}{F} A \left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right) \exp\left[j\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right)t\right],$$
$$a_2 = \frac{\hbar}{F} B \left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right) \exp\left[j\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right)t\right]. \tag{4.43}$$

Il s'ensuit que la fonction Ψ cherchée de l'état mixte s'écrit :

$$\Psi = \Psi_1 \frac{\hbar}{F}\left\{A\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right) \exp\left[j\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right)t\right] + B\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right) \exp\left[j\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right)t\right]\right\} + \Psi_2\left\{A \exp\left[-j\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right)t\right] + B \exp\left[-j\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right)t\right]\right\}. \tag{4.44}$$

On détermine les constantes A et B en posant que $\Psi = \Psi_1$ pour $t = 0$. On a alors $A = -B = F/2\hbar\Omega$. Finalement

$$\Psi = \Psi_1\left\{\frac{\delta - 2\Omega}{4\Omega} \exp\left[j\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right)t\right] - \frac{\delta + 2\Omega}{4\Omega} \exp\left[j\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right)t\right]\right\} + \Psi_2 \frac{F}{2\hbar\Omega}\left\{\exp\left[-j\left(\frac{\delta}{2} - \Omega\right)t\right] - \exp\left[-j\left(\frac{\delta}{2} + \Omega\right)t\right]\right\}. \tag{4.45}$$

Si $\Psi = \Psi_1$ pour $t = 0$, le carré du module du coefficient de Ψ_2 représente la probabilité de trouver la particule sur le deuxième niveau aussitôt après avoir appliqué le champ. Cette probabilité est donnée par

$$\Pi = \frac{F^2}{2\hbar^2\Omega^2}(1 - \cos 2\Omega t). \tag{4.46}$$

La valeur de Π oscille avec la fréquence 2Ω entre la valeur zéro et la valeur $F^2/\hbar^2\Omega^2$. Exactement à la résonance (cf. (4.41)) $\Omega^2 = F^2/\hbar^2$ et la probabilité oscille entre 0 et 1 :

$$\Pi = \frac{1}{2}\left(1 - \cos 2\frac{Ft}{\hbar}\right). \tag{4.47}$$

En revenant aux notations initiales (4.38), (4.41), on constate que ce sont l'intensité d'éclairage et le moment dipolaire de la transition qui déterminent la fréquence des oscillations

$$\Omega^2 = \frac{\delta^2}{4} + \left\langle\frac{\mu E}{\hbar}\right\rangle^2 = \frac{\delta^2}{4} + \Omega_R^2, \tag{4.48}$$

où on a utilisé la notation Ω_R pour désigner la fréquence dite de Rabi

$$\Omega_R = \left\langle\frac{\mu E}{\hbar}\right\rangle. \tag{4.49}$$

Récrivons (4.46) avec les nouvelles notations:

$$\Pi = \frac{2\Omega_R^2}{\delta^2 + 4\Omega_R^2}\left(1 - \cos(\delta^2 + 4\Omega_R^2)^{1/2}t\right). \qquad (4.50)$$

Les cas limites sont particulièrement suggestifs. Si la dérive est petite (champ d'éclairage fort), $\delta \ll \Omega_R$,

$$\Pi = \frac{1}{2}(1 - \cos 2\Omega_R t). \qquad (4.51)$$

Si la dérive est grande (champ d'éclairage faible), $\delta \gg \Omega_R$,

$$\Pi = 2(1 - \cos \delta t)\frac{\Omega_R^2}{\delta^2}. \qquad (4.52)$$

La signification des formules (4.51) et (4.52) est assez évidente. Dans un champ d'éclairage de grande intensité, tel que la fréquence de Rabi soit notablement supérieure à la dérive de la fréquence de ce champ par rapport à la résonance, la particule oscille entre le niveau supérieur et le niveau inférieur avec la fréquence de Rabi. Dans un champ faible, tel que la fréquence de Rabi correspondante ne recouvre pas spectralement la dérive de la fréquence du champ par rapport à la fréquence de résonance, la probabilité de trouver la particule sur le niveau supérieur n'atteint jamais l'unité, et les oscillations de cette probabilité s'effectuent avec la fréquence de la dérive. D'autre part, exactement à la résonance, la particule parvient nécessairement sur le niveau supérieur même en champ faible, mais au bout d'un temps très long, correspondant à la lenteur des oscillations de Rabi.

Donnons quelques estimations numériques. Une valeur de $\langle\mu\rangle$ égale à 1 D (debye) ou 10^{-18} CGSE est usuelle pour des raies d'absorption à la resonance de bonne résolution spectrale. A une intensité d'éclairage de 1 MW/cm^2, par exemple, correspond, selon la formule (3.7), une intensité du champ électrique égale à $270 \cdot 10^2$ V/cm ou 10^2 CGSE. La valeur de $\hbar$ est bien connue : $\approx 10^{-27}$ erg·s. La fréquence de Rabi est donc égale à 10^{11} Hz ou en unités spectroscopiques à 3,3 cm^{-1}.

Notons qu'à un moment dipolaire de 1 D correspond, selon (4.25), un coefficient d'Einstein $B_{12} = 8 \cdot 10^{18}$ CGSE et pour une onde de 0,5 μm de longueur un coefficient d'Einstein (cf. la formule (1.11)) $A_{21} = 10^7$ s^{-1}, à quoi correspond une durée de vie naturelle $\tau_0 = 0{,}1$ μs.

Indiquons pour conclure que les résultats qui viennent d'être exposés ne représentent que la première approximation de la théorie des perturbations ; on en trouve un exposé rigoureux in *Landau* et *Lifchitz*, Mécanique quantique, Mir, 1980, § 40.

Nous voudrions remarquer qu'il n'a pas été tenu compte dans l'exposé ci-dessus ni des processus de relaxation, ni de la dépopulation spontanée du niveau supérieur. Cela implique que les résultats ci-dessus ne sont cor-

rects que sur des intervalles de temps petits par rapport à la durée de vie τ de l'état supérieur. Pour des temps longs, la cohérence des états est perturbée et il faut utiliser des équations d'évolution.

Cinquième leçon. LES LASERS-AMPLIFICATEURS

Amplification et génération. Bande passante de l'amplificateur à onde progressive. Bruits de l'amplificateur quantique. Puissance de sortie maximale. Régime impulsionnel, énergie de sortie maximale, modification de la forme de l'impulsion résultant d'une amplification non linéaire.

En électronique quantique, l'émission stimulée d'un milieu actif est utilisée pour assurer l'amplification cohérente des ondes électromagnétiques et pour réaliser des amplificateurs et des générateurs quantiques. Il importe de bien marquer la différence entre les amplificateurs et les générateurs quantiques.

Les amplificateurs quantiques ou autrement les amplificateurs lasers servent à accroître l'intensité du champ électrique d'une onde électromagnétique parvenant à l'entrée. A ce point de vue, les amplificateurs quantiques de la gamme des fréquences radio ou de la gamme optique sont semblables aux amplificateurs à lampes ou à semiconducteurs.

Les générateurs quantiques sont des sources de rayonnements produits dans le dispositif générateur et qui s'en échappent dans l'espace libre. Ils sont donc semblables aux générateurs radio classiques et exigent comme ces derniers un couplage à réaction positive. Autrement dit, les générateurs quantiques sont des systèmes auto-oscillants qui génèrent des vibrations électromagnétiques lors du processus d'amplification cohérente des vibrations grâce à un couplage à réaction convenable. Conformément à la théorie des systèmes auto-oscillants usuels, les générateurs quantiques doivent émettre un rayonnement monochromatique. Il est important de noter que dans les générateurs lasers l'émission stimulée du milieu actif est telle que les quanta secondaires reproduisent non seulement la fréquence mais encore la direction de propagation des quanta primitifs. C'est pour cela que l'émission laser est caractérisée par une haute directivité et que le rayon laser se forme de lui-même dans le générateur.

On doit noter cependant qu'il existe des lasers-générateurs qui ne sont pas des systèmes auto-oscillants. On examinera ces cas d'exception à la règle générale plus tard, à l'occasion de l'étude des lasers superluminiques (à superfluorescence), mais en vue des applications à des lasers concrets.

Le couplage à réaction, qui est généralement nécessaire pour le fonctionnement en générateur, est assuré en enfermant le milieu actif dans une cavité résonnante où un système d'ondes électromagnétiques stationnaires peut être excité. En un point de la cavité résonnante, à la suite d'une transi-

tion spontanée (qui est inévitable) d'un niveau supérieur à un niveau inférieur, s'amorce spontanément une émission. Si la cavité est accordée à la résonance à sa propre fréquence et si le quantum émis est capté par l'une des ondes stationnaires, l'émission s'accumule peu à peu dans l'onde stationnaire et agit sur la substance active en y provoquant une émission stimulée. Si la puissance de l'émission stimulée est plus grande que la puissance des pertes dues à l'échauffement des parois de la cavité, à la diffusion de l'émission, etc., ainsi qu'à l'émission utile dans l'espace extérieur, autrement dit, si les conditions d'auto-excitation sont satisfaites, des oscillations non amorties font leur apparition dans la cavité résonnante. En vertu des propriétés de l'émission stimulée, ces oscillations sont monochromatiques. Toutes les particules de la substance active fonctionnent de façon synchrone. Ce synchronisme résulte du couplage à réaction positive qui est assuré dans les actes d'émission stimulée par le rayonnement accumulé dans la cavité grâce à la réflexion par les parois.

Tout cela représente le schéma de fonctionnement idéal d'un laser-générateur. Dans ce qui suit, les différents aspects qui viennent d'être esquissés seront traités en détail.

On doit faire une digression.

Une caractéristique remarquable de l'électronique quantique et de l'électronique en général est que le développement de chaque nouvelle branche, l'appropriation de chaque nouvelle gamme de fréquences commence toujours par l'élaboration d'un générateur et ce n'est qu'après qu'apparaissent les amplificateurs. Il se peut que cela tienne à ce que les générateurs mettent mieux en évidence les avantages du nouveau principe, ou peut-être à ce que les amplificateurs ne deviennent utiles que lorsqu'il y a de quoi amplifier. Quoi qu'il en soit, l'électronique quantique s'annonça en créant des générateurs.

Dans la gamme UHF, ce fut le premier maser-générateur à l'ammoniac puis le maser-amplificateur paramagnétique.

Dans la gamme optique, les premières expériences d'amplification passèrent inaperçues et l'avènement de l'électronique quantique de la gamme optique fut marqué par l'apparition des lasers-générateurs à rubis et à mélange de néon et d'hélium. Plus tard furent élaborés des amplificateurs optiques de grande puissance.

Néanmoins, nous commencerons par l'étude des amplificateurs pour deux raisons, la première est que l'amplificateur est plus simple que le générateur et, deuxièmement, parce que tout générateur est un amplificateur auto-excité à réaction.

Commençons par la bande passante de l'amplificateur fonctionnant en régime linéaire. La formule (3.5) caractérise le facteur d'amplification au centre de la raie de résonance (avec $n_2/g_2 > n_1/g_1$). Notons α_0 le facteur

d'amplification linéaire (i.e. pour les petits signaux) au centre de la raie d'inversion de l'absorption par résonance. On mesure α_0 en cm^{-1} et on l'appelle fréquemment indice d'amplification. En restant dans le cadre des traditions en vigueur chez nous, on l'appellera facteur d'amplification.

Pour tenir compte de la variation du facteur d'amplification en fonction de la fréquence on utilisera le facteur de forme $q(\nu)$ de la raie et on écrira $\alpha(\nu)$ sous la forme

$$\alpha(\nu) = \alpha_0 q(\nu)/q(\nu_0). \tag{5.1}$$

Dans le régime d'ondes progressives, le facteur d'amplification en puissance de l'amplificateur tout entier est donné par

$$G(\nu) = \exp[(\alpha_0 q(\nu)/q(\nu_0) - \beta)l], \tag{5.2}$$

où l est la longueur de l'amplificateur et β le facteur des pertes hors résonance. La largeur de la bande passante dépend de l'amplification réalisée et diminue à mesure que cette dernière augmente. En effet, si on définit la largeur de la bande passante de l'amplificateur comme étant la gamme des fréquences où l'amplification est supérieure à la moitié de l'amplification maximale, l'équation

$$G(\nu) = G(\nu_0)/2 \tag{5.3}$$

permettra de calculer la largeur de la bande passante

$$q(\nu)/q(\nu_0) = 1 - \ln 2/\alpha_0 l. \tag{5.4}$$

Si l'on connaît la forme de $q(\nu)$, on arrive à calculer les valeurs de ν déterminant la largeur de la bande passante. Dans le cas d'un élargissement homogène, i.e. dans le cas d'une raie ayant la forme de Lorentz (2.7), un calcul simple permet de trouver la largeur de la bande passante pour l'amplification des ondes progressives

$$\Delta\nu = \Delta\nu_L(\ln 2)^{1/2}(\ln G_0 + \ln L - \ln 2)^{-1/2}, \tag{5.5}$$

où $G_0 = G(\nu_0) = \exp[(\alpha_0 - \beta)l]$ est le facteur d'amplification au centre de la raie et $L = \exp[\beta l]$ est le facteur de pertes.

On voit que dans le cas d'une inversion de population, i.e. lors de l'amplification, la largeur de la raie diminue. En régime d'ondes progressives, cette diminution de largeur est lente, mais peut devenir importante pour de grandes amplifications. Tout cela s'explique simplement. En raison de la dépendance exponentielle existant entre le facteur d'amplification et la longueur l de l'amplificateur, les composantes spectrales correspondant au centre de la raie subissent une amplification plus forte. A la limite des grandes longueurs (G_0 grands) seule la composante centrale est amplifiée. En fait c'est ainsi que s'effectue le passage aux lasers à superfluorescence, dont il sera question à la fin du cours.

On conçoit aisément que la formule (5.5) n'est valable que pour $G_0 > 2$.

Examinons maintenant la question des bruits de l'amplificateur quantique à onde progressive. Négligeons les bruits thermiques pour ne tenir compte que des bruits dus à l'émission spontanée. A la température ordinaire, cela correspond à la gamme optique, tandis que dans la gamme radio cela correspond à la temperature de l'hélium liquide. Le cas optique correspond à l'émission spontanée dans l'espace libre sur tous les modes. Dans le cas de la gamme radio, on arrive assez facilement à isoler un type de propagation guidée.

L'équation donnant l'accroissement d'énergie par unité de temps dans l'unité de volume de la substance active de l'amplificateur est de la forme

$$\frac{d\varrho}{dt} = (n_2 - n_1)\frac{h\nu B_{21}\varrho}{\pi\Delta\nu_L} + n_2\frac{h\nu 8\pi\nu^2 h\nu B_{21}}{c^3\pi\Delta\nu_L}. \tag{5.6}$$

On a posé $g_1 = g_2$ pour simplifier l'écriture. On notera que le second terme représente l'émission dans 4π stéradians.

Considérons la densité du flux d'énergie (l'intensité) par unité d'intervalle spectral, i.e. l'énergie passant à travers l'unité de section droite par unité de temps et répartie dans l'unité d'intervalle spectral, le long de l'axe z de l'amplificateur. Comme $dz = c\,dt$, $\varrho = I/c$, on a

$$\frac{dI}{dz} = (n_2 - n_1)\frac{h\nu B_{21} I}{c\pi\Delta\nu_L} + n_2\frac{h\nu 8\pi h\nu B_{21}}{\lambda^2 c\pi\Delta\nu_L}. \tag{5.7}$$

En ce qui concerne le flux d'énergie total (la puissance) par unité d'intervalle spectral $P = AI$ (A est l'aire de l'ouverture de l'amplificateur), on obtient

$$\frac{dP}{dz} = (n_2 - n_1)\frac{h\nu B_{21} P}{c\pi\Delta\nu_L} + 2n_2\frac{(h\nu)^2\Omega(z)B_{21}A}{\lambda^2 c\pi\Delta\nu_L}, \tag{5.8}$$

à condition de remarquer que dans le dernier terme de (5.7) l'émission spontanée ne se propage, en s'amplifiant, que dans le sens de l'extrémité de sortie de l'amplificateur dans un angle solide $\Omega(z)$ (et non pas dans 4π stéradians). C'est pour cela que dans le dernier terme ne figure que sa fraction égale à $\Omega(z)/4\pi$.

Pour un amplificateur de grande longueur ayant un grand facteur d'amplification on peut poser en approximation que l'angle Ω est l'angle sous lequel on voit la pupille d'entrée de l'amplificateur depuis son extrémité de sortie. On a alors

$$\Omega(z) \approx \Omega = A/4\pi l, \tag{5.9}$$

d'où

$$\frac{dP}{dz} = (n_2 - n_1)\frac{h\nu B_{21}}{c\pi\Delta\nu_L}P + 2n_2\frac{(h\nu)^2 B_{21} A^2}{\lambda^2 4\pi l^2 c\pi\Delta\nu_L} \tag{5.10}$$

L'intégration de (5.10) donne pour $P_{ent} = P(z = 0) = 0$

$$P_{sort} = P(z = l) = \\ = 2h\nu \frac{n_2}{n_2 - n_1} \frac{A}{\lambda^2} \frac{A}{4\pi l^2} \left\{ \exp\left[(n_2 - n_1) \frac{h\nu B_{21}}{c\pi \Delta\nu_L} l \right] - 1 \right\}. \quad (5.11)$$

Comme on a

$$\exp\left[(n_2 - n_1) \frac{h\nu B_{21}}{c\pi \Delta\nu_L} l \right] = \exp[\alpha_0 l] = G_0, \quad (5.12)$$

on obtient

$$P_{sort} = 2h\nu \frac{n_2}{n_2 - n_1} \frac{A}{\lambda^2} \frac{A}{4\pi l^2} (G_0 - 1). \quad (5.13)$$

Le calcul de la puissance de bruit efficace par unité d'intervalle spectral à l'entrée de l'amplificateur conduit au résultat suivant :

$$p_{ent}^{eff} = 2h\nu \frac{n_2}{n_2 - n_1} \frac{A}{\lambda^2} \frac{A}{4\pi l^2} \frac{G_0 - 1}{G_0}. \quad (5.14)$$

Le facteur 2 tient compte de l'existence de deux polarisations. On a $A/\lambda^2 \gg 1$, $A/4\pi l^2 \ll 1$, mais comme la condition $\sqrt{A}/l > \lambda/\sqrt{A}$ imposée par l'optique géométrique doit être satisfaite, on a toujours $(A/\lambda^2)(A/4\pi l^2) \gg$ $\gg 1$.

Il est cependant facile de s'assurer que dans le cas d'une propagation guidée à mode unique (et non pas dans les conditions de validité de l'optique géométrique) et avec une seule polarisation, le résultat (5.14) doit s'écrire

$$p_{ent}^{eff} = h\nu \frac{n_2}{n_2 - n_1} \frac{G_0 - 1}{G_0}. \quad (5.15)$$

Si l'inversion de population et le facteur d'amplification sont grands, on a

$$p_{ent}^{eff} = h\nu. \quad (5.16)$$

Les formules (5.15) et (5.16) correspondent à l'amplification réalisée en cours de propagation de l'émission dans une substance active disposée dans un guide d'onde UHF de section rectangulaire. La même conclusion concerne les guides d'ondes optiques se présentant sous la forme de fibres diélectriques monomodes.

On voit que la puissance de bruit efficace minimale à l'entrée d'un amplificateur quantique par unité d'intervalle spectral est égale à $h\nu$. On démontre que n'importe quel amplificateur cohérent, i.e. n'importe quel amplificateur qui assure la conservation de la phase du signal d'entrée, tout en amplifiant son intensité, présente à l'entrée, en vertu de la relation d'incertitude $\Delta n \Delta\varphi \geq 1/2$, des bruits dont la puissance par unité d'inter-

valle spectral est égale à $h\nu$; ces bruits ne peuvent être éliminés par principe. C'est C. H. Townes qui le remarqua le premier.

Examinons maintenant les caractéristiques énergétiques des amplificateurs lasers, ou plus exactement, examinons la question de la puissance de sortie de l'amplificateur quantique à ondes progressives.

En optique, on n'utilise que rarement les amplificateurs quantiques pour l'amplification de petits signaux dans le but d'accroître la sensibilité des récepteurs d'ondes électromagnétiques de la gamme optique ; la raison en est la haute qualité de ces récepteurs. Pour la réception de signaux faibles, l'utilisation d'amplificateurs quantiques peut être indiquée dans l'infrarouge lointain et dans la gamme UHF. Une application intéressante des amplificateurs quantiques en informatique est l'amplification des images (intensificateur d'image), par exemple en microscopie laser où il faut amplifier une lumière d'intensité relativement faible, réfléchie ou transmise par l'objet, sans altération de ce dernier, à l'aide d'un amplificateur laser afin d'accroître suffisamment la brillance pour pouvoir projeter l'image sur un grand écran. Il est évident que pour cette application, il faut utiliser un amplificateur laser à modes multiples, car l'information sur la distribution spatiale des traits caractéristiques de l'image transmise ne peut être portée que par une onde non plane. En général, les intensificateurs d'image fonctionnent avec des signaux d'entrée dont l'intensité est notablement plus grande que sa valeur de seuil.

Le niveau des signaux d'entrée est encore plus haut lorsqu'on utilise les amplificateurs lasers pour l'amplification de la puissance des générateurs lasers afin d'obtenir une très grande puissance ou une énergie de sortie très grande sans préjudice pour la qualité de l'émission. Il est notoire que toutes les opérations auxquelles on soumet les rayonnements (accord et stabilisation de la fréquence, modulation d'amplitude, de fréquence, de phase, d'impulsion, production d'impulsions, etc.) sont commodes à réaliser aux puissances moyennes de l'émission. Lorsqu'il est indispensable de disposer d'une grande puissance, on est obligé de recourir à l'amplification. En électronique quantique, on utilise pour cela les amplificateurs quantiques.

Lorsqu'on envisage la question de la puissance de sortie des lasers amplificateurs, on doit tenir compte de l'effet de saturation. La formule (3.30) donnant la différence d'occupation $n_2 - n_1$ des niveaux a été établie à l'aide des équations d'évolution pour le cas de raies uniformément élargies. Dans ce qui suit, nous ne considérerons que ce cas-là. Comme la différence $n_2 - n_1$ détermine le facteur d'amplification, l'équation de transport de l'émission dans un milieu caractérisé par un facteur de pertes hors résonance β et par le facteur d'amplification linéaire α_0 s'écrit, compte tenu de (3.30) et dans le cas simple où $g_1 = g_2$, sous la forme

$$\frac{dI}{dz} = -\beta I + \frac{\alpha_0 I}{(1 + I/I_S)} \tag{5.17}$$

En introduisant l'intensité sans dimension $J = I/I_S$, après quelques transformations simples cette équation s'écrit

$$dz = \frac{1 + J}{J} \frac{dJ}{\alpha_0 - \beta - \beta J}, \tag{5.18}$$

ce qui est facile à intégrer. Pour une longueur l de l'amplificateur on trouve

$$(\alpha_0 - \beta)l = \ln \frac{J_2}{J_1} - \frac{\alpha_0}{\beta} \ln \frac{\alpha_0 - \beta(1 + J_2)}{\alpha_0 - \beta(1 + J_1)}, \tag{5.19}$$

où J_1 est l'intensité à l'entrée et J_2 l'intensité à la sortie. La forme générale de cette équation transcendante est d'une interpétation difficile quoiqu'il soit toujours possible de construire les graphiques correspondants de la relation $J_2(J_1)$ avec α_0 et β en qualité de paramètres. Ce sont cependant les cas particuliers qui présentent surtout de l'intérêt.

Si les quantités $\beta J_2/(\alpha_0 - \beta)$ et $\beta J_1/(\alpha_0 - \beta)$ sont petites, (5.19) se transforme en

$$(\alpha_0 - \beta)l = \ln \frac{J_2}{J_1} + \frac{\alpha_0}{\alpha_0 - \beta} (J_2 - J_1). \tag{5.20}$$

Pour de faibles signaux ($J_2 \ll 1$, $J_1 \ll 1$) le premier terme prédomine largement et on obtient une croissance exponentielle de l'intensité de sortie (amplification linéaire) :

$$J_2 = J_1 \exp[(\alpha_0 - \beta)l]. \tag{5.21}$$

S'il n'y a pas de pertes d'énergie ($\beta = 0$), lorsque la saturation devient importante ($J_1 \gg 1$), la croissance exponentielle cède la place à une croissance linéaire. En effet, si $J_1 \gg 1$, on peut écrire

$$\ln \frac{J_2}{J_1} = \ln\left(1 + \frac{J_2 - J_1}{J_1}\right) = \frac{J_2 - J_1}{J_1},$$

et on tire alors de (5.20)

$$\alpha_0 l = \frac{J_2 - J_1}{J_1} + J_2 - J_1, \tag{5.22}$$

où

$$J_2 = J_1 + \alpha_0 l \frac{J_1}{1 + J_1} \approx J_1 + \alpha_0 l. \tag{5.23}$$

Lorsqu'il n'y a pas de pertes d'énergie dans les conditions d'une forte saturation, chaque élément de l'amplificateur apporte sa contribution en énergie au flux total. La situation change radicalement dès qu'on tient compte des pertes. Pour des valeurs petites mais finies du rapport β/α_0 et pour J_1, $J_2 \gg 1$, on peut récrire l'équation initiale (5.19) sous la forme

$$\frac{J_2^{\beta/\alpha_0}}{\alpha_0 - \beta J_2} = \frac{J_1^{\beta/\alpha_0}}{\alpha_0 - \beta J_1} \exp \frac{(\alpha_0 - \beta)\beta l}{\alpha_0}. \tag{5.24}$$

En négligeant la différence entre les valeurs de J_2^{β/α_0} et de J_1^{β/α_0} et en négligeant la quantité β/α_0 devant l'unité, on déduit de (5.24)

$$J_2 = \frac{\alpha_0}{\beta}(1 - e^{-\beta l}) + J_1 e^{-\beta l}. \tag{5.25}$$

Pour les grandes longueurs ($\beta l \gg 1$) le signal d'entrée s'amortit et le signal de sortie prend sa valeur stationnaire (en unités $I = JI_S$)

$$I_{\max} = \frac{\alpha_0}{\beta} I_S. \tag{5.26}$$

Ces résultats permettent de conclure que dans un laser amplificateur à onde progressive, l'intensité de l'émission de sortie dépend en dernière analyse de la valeur de l'intensité de saturation, du facteur d'amplification linéaire et du facteur de pertes. L'intensité de l'émission se propageant dans l'amplificateur ne prend sa valeur stationnaire que lorsque tout ce que peut émettre chaque élément de longueur du milieu actif fonctionnant en régime de saturation complète est absorbé dans le même élément de longueur par suite des pertes hors résonance. Cette égalité de l'énergie émise et absorbée est la cause de ce que l'effet d'amplification disparaît à mesure que l'onde se propage plus avant le long de l'amplificateur.

Les résultats présentés ci-dessus découlent de la solution générale de l'équation du transport de l'énergie. On peut cependant procéder à une analyse plus simple des cas limites considérés ci-dessus en se fondant sur l'équation (5.17). Ainsi, pour $I/I_S \gg 1$, l'équation (5.17) s'écrit

$$\frac{dI}{dz} = -\beta I + \alpha_0 I_S. \tag{5.27}$$

Lorsque l'intensité prend sa valeur maximale $I_{\max}$, cela signifie qu'aucune amplification ultérieure ne peut avoir lieu. Par conséquent $dI/dz = 0$, ce qui a lieu pour $I_{\max} = (\alpha_0/\beta)I_S$, i.e. conformément à (5.26). Une résolution directe de l'équation simplifiée (5.27) conduit dans ce cas au même résultat que la transformation de la solution générale de l'équation (5.17). La situation est analogue dans les cas où $\beta = 0$ et I est petit.

Ces considérations concernent un régime d'amplification continu de signaux continus. Le régime d'impulsion, i.e. le régime dont les temps caractéristiques sont inférieurs au temps de relaxation des populations du milieu actif de l'amplificateur, doit faire l'objet d'une étude spéciale.

Il est facile de faire une estimation énergétique simple de ce cas. Si les signaux sont suffisamment forts pour provoquer une saturation complète de l'amplification impulsionnelle, un segment de longueur dz de l'amplificateur émet une énergie égale à $(nh\nu/2)dz$, où n est l'inversion de population par unité de longueur de l'amplificateur. En raison de l'existence de pertes linéaires hors résonance, ce même segment absorbe une énergie égale à

$\beta F dz$, F étant la densité d'énergie passant par la section droite de l'amplificateur.

L'équation du bilan est donc de la forme

$$n\,\frac{h\nu}{2} - \beta F = \frac{dF}{dz}, \qquad (5.28)$$

ce qui est en somme équivalent à l'équation (5.27). La densité d'énergie prend sa valeur maximale F_{max} lorsque dF/dz s'annule. Par conséquent,

$$F_{max} = n\,\frac{h\nu}{2\beta}. \qquad (5.29)$$

En utilisant l'expression (3.34) de la densité de l'énergie de saturation $F_S = h\nu/2\sigma$ et l'expression (3.13) du facteur d'amplification linéaire $\alpha_0 = n\sigma$, on trouve

$$F_{max} = \frac{\alpha_0}{\beta}\,F_S. \qquad (5.30)$$

La forme de (5.30) est analogue à celle de (5.16), mais les formules ne sont pas équivalentes, puisqu'on ne peut obtenir (5.30) en multipliant les deux membres de (5.16) par la durée de l'impulsion. La non-évidence de ces formules tient à ce que les signaux impulsionnels saturent le système quantique à deux niveaux autrement que ne le font les signaux continus (voir fin de la troisième leçon).

Dans le cas de signaux impulsionnels, il faut tenir compte non seulement des caractéristiques énergétiques de l'amplificateur, mais aussi de la forme et de la durée des impulsions de rayonnement amplifiées. Du fait du caractère essentiellement non linéaire des interactions d'une impulsion de grande puissance avec le milieu amplificateur, l'impulsion provoquant une diminution de l'inversion des populations avec émission de l'énergie accumulée dans le milieu actif, la forme de l'impulsion change au fur et à mesure de son amplification. Lorsque l'intensité est grande, le front de montée de l'impulsion provoque déjà une importante diminution de l'inversion des populations, et de ce fait il subit une plus forte amplification que le front de descente. Le centre de gravité de la répartition de l'énergie dans l'impulsion s'en trouve déplacé vers le front de montée et si les fronts sont raides, la durée de l'impulsion est écourtée.

Une digression s'impose ici.

Lorsqu'une courte impulsion de rayonnement cohérent se propage dans un milieu résonnant amplificateur, le caractère cohérent de l'interaction du rayonnement avec la substance du milieu peut se manifester. Lors d'une interaction cohérente, le moment dipolaire induit par le rayonnement dans les particules de substance ne s'amortit pas spontanément pendant la durée de l'interaction. Cela signifie que lors des interactions cohérentes, la durée de l'impulsion doit être plus courte que le temps le plus court de relaxation

de la polarisation du milieu actif (voir fin de la quatrième leçon). Lorsque la durée de l'impulsion de rayonnement est supérieure à la durée de la mémoire de phase, l'interaction ne peut être cohérente.

Dans les conditions existant normalement dans les amplificateurs lasers de grande puissance, l'interaction n'est pas cohérente. La condition d'incohérence de l'interaction d'une impulsion de rayonnement cohérent avec la substance active est que l'état cohérent de la substance soit détruit pendant la durée de l'impulsion

$$\tau_{imp} \gg \frac{1}{2\pi\Delta\nu_L}. \tag{5.31}$$

Puisque l'amplificateur ne peut amplifier les signaux, dont la durée est inférieure à l'inverse de la largeur de sa bande passante, la condition (5.31) est toujours satisfaite pour les amplificateurs de grande longueur et de grand facteur d'amplification.

Lorsque l'interaction est incohérente, on peut utiliser les équations ordinaires de transport du rayonnement, déduites de la loi de la conservation de l'énergie. Du fait du caractère non stationnaire du processus d'amplification des impulsions, on doit remplacer l'équation (5.17) aux dérivées ordinaires par une équation aux dérivées partielles :

$$\frac{1}{c}\frac{\partial I}{\partial t} + \frac{\partial I}{\partial z} = (\alpha - \beta)I, \tag{5.32}$$

où le facteur d'amplification α est fonction de l'intensité. En régime impulsionnel l'effet de saturation dont dépend la variation du facteur d'amplification avec l'intensité du signal s'exprime par une formule de la forme (3.45). Dans ces conditions, l'équation de transport d'une impulsion courte ($\tau_{imp} \ll \tau$) se présente sous la forme

$$\frac{1}{c}\frac{\partial I}{\partial t} + \frac{\partial I}{\partial z} = \left\{\alpha_0 \exp\left[-\frac{1}{2}\frac{g_1 + g_2}{g_2}\frac{1}{F_S}\int_{-\infty}^{t} I(t', z)dt'\right] - \beta\right\}I, \tag{5.33}$$

où α_0 est le facteur d'amplification linéaire (facteur d'amplification de petits signaux), $F_S = h\nu/2\sigma$; dans l'expression figurant sous le signe d'intégration, il a été tenu compte de la variation éventuelle de la forme de l'impulsion $I(t, z)$ lors de sa propagation suivant z.

Sous la forme générale, l'équation (5.33) ne peut être résolue. Le cas idéal de pertes nulles ($\beta = 0$), qui est peu conforme à la réalité, admet une solution prévoyant un accroissement linéaire illimité de l'énergie dès qu'on dépasse la densité de l'énergie de saturation F_S, résultat analogue à celui du régime continu.

La solution numérique de (5.33) permet d'analyser la variation de la forme de l'impulsion en fonction de son amplification. Le cas simple de

la diminution de la durée de l'impulsion amplifiée se trouve réalisé lorsque l'impulsion d'entrée a une forme rectangulaire. La situation est différente si le front de montée de l'impulsion est oblique. La plus forte amplification de la partie avant de l'impulsion fait qu'à mesure de l'amplification le maximum de l'impulsion se déplace sur le front de montée dans le sens de propagation du rayonnement amplifié. La valeur du déplacement est déterminée par le caractère du front de montée de l'impulsion initiale. Le déplacement du maximum s'oppose à la diminution de la durée de l'impulsion. Par suite, lors d'une amplification non linéaire, seules les impulsions à fronts de montée raides sont raccourcies. C'est le cas, notamment, des impulsions de forme gaussienne $I \propto \exp(-t^2/\tau_{imp}^2)$. Dans le cas d'un accroissement exponentiel du front de montée, l'impulsion n'est pas raccourcie. Lorsque l'amplification non linéaire est utilisée pour diminuer la longueur de l'impulsion amplifiée, on coupe à l'entrée, par un procédé adéquat, la partie oblique du front de montée de l'impulsion. Actuellement, ce procédé de raccourcissement des impulsions est peu utilisé, quoiqu'il puisse être mis à profit pour amplifier l'une des courtes impulsions d'une suite périodique.

Sixième leçon. L'ÉMISSION

La cavité résonnante ouverte et son facteur de mérite. Régénération du résonateur en cours d'amplification. Amplificateur à résonateur à transmission. Amplificateur réflexe. Conditions d'auto-excitation. Conditions de résonance. Fréquence de l'émission générée. Puissance de sortie maximale.

Dans ce qui précède, nous avons étudié l'amplificateur à onde progressive. Or, l'interaction du rayonnement à amplifier et de la substance active peut avoir également lieu en régime d'ondes stationnaires. Dans ce dernier cas, le rayonnement parcourt maintes fois de suite la substance disposée dans la cavité résonnante. Dans la gamme des ondes radio, on utilise généralement des cavités résonnantes dont les dimensions sont comparables à la longueur des ondes qui y sont excitées. On comprend que, la longueur d'onde étant très petite, il est impossible de fabriquer des cavités résonnantes aussi petites. C'est pour cela que pour la gamme des ondes submillimétriques (infrarouge) A. Prokhorov utilisa des résonateurs ouverts dont les dimensions sont plusieurs fois plus grandes que la longueur d'onde des vibrations électromagnétiques qui y sont excitées. C'est grâce à l'utilisation en optique des résonateurs ouverts que furent créés les premiers lasers.

La structure la plus simple du résonateur ouvert comporte deux plaques réfléchissantes, i.e. deux miroirs parallèles placés à une distance $l \gg \lambda$ l'un de l'autre. Souvent ce sont des miroirs de forme circulaire. Le diamètre des mitoirs est également beaucoup plus grand que la longueur λ des ondes excitées dans le résonateur. On peut admettre qu'une onde stationnaire

plane sera excitée entre les miroirs si leur distance est égale à un multiple entier de demi-longueurs d'onde. Lorsque les dimensions des miroirs sont suffisamment grandes, on peut négliger les pertes d'énergie par diffraction. En outre, si l'espace entre les miroirs est rempli d'un milieu sans pertes d'énergie, le facteur de mérite du résonateur sera déterminé uniquement par les pertes d'énergie à la réflexion et dans le cas de miroirs parfaitement réfléchissants, il sera déterminé par les pertes d'énergie par transmission à travers les miroirs.

Lorsque le facteur de réflexion R est grand, on peut estimer le facteur de mérite du résonateur en se fondant sur des considérations énergétiques simples. Supposons que la distribution du champ dans le résonateur est peu différente de celle d'une onde stationnaire. Une onde stationnaire est équivalente à deux ondes progressives de même intensité se propageant en sens opposés. Soit P le flux d'énergie transporté par chacune de ces ondes progressives. La puissance perdue par réflexion sur deux miroirs identiques est alors égale à $2P(1 - R)$. D'autre part, l'énergie accumulée dans le résonateur est égale à $2Pl/c$.

En physique des vibrations et en électronique, on donne plusieurs définitions équivalentes du facteur de mérite des systèmes oscillants. La définition la plus générale est la définition énergétique selon laquelle le facteur de mérite d'un résonateur est égal à

$$Q = 2\pi \frac{\text{énergie accumulée dans le résonateur}}{\text{énergie perdue par le résonateur par période}}. \tag{6.1}$$

D'autre part

$$Q = \frac{2\pi l}{\lambda} \frac{1}{1 - R}, \tag{6.2}$$

avec $R \leqslant 1$. L'effet produit par les surfaces réfléchissantes peut être considéré comme un allongement de $1/(1 - R)$ fois du chemin l parcouru par une onde plane dans le résonateur.

Il est évident que pour pouvoir utiliser les résonateurs ouverts en théorie des lasers, il faut disposer d'une étude plus poussée de ces résonateurs et de la distribution du champ d'émission qui s'y établit. La seule chose qui compte pour l'instant est que deux disques réfléchissants, i.e. deux miroirs parallèles, constituent un résonateur de grand Q. En fait, le résonateur ouvert n'est rien d'autre que l'interféromètre de Fabry-Pérot, bien connu en optique. Le facteur de mérite de l'interféromètre considéré comme un résonateur est égal au pouvoir de résolution de l'interféromètre défini par le rapport de la longueur d'onde λ à la largeur $\delta\lambda$ du lobe d'interférence pour une intensité égale à la moitié de l'intensité maximale. Le pouvoir de résolution de l'interféromètre de Fabry-Pérot en lumière transmise est

donné dans les cours d'optique. Pour des miroirs identiques

$$Q = \frac{\lambda}{\delta\lambda} = \frac{2\pi l}{\lambda} \frac{\sqrt{R \exp(-\alpha l)}}{1 - R \exp(-\alpha l)}, \tag{6.3}$$

où $\exp(-\alpha l)$ caractérise les pertes d'énergie par passage. Les formules (6.3) et (6.2) coïncident lorsque $\alpha = 0$ et $R \approx 1$.

En admettant que α n'est déterminé que par les pertes de résonance, dès que l'inversion des populations est réalisée, le facteur de pertes $\exp(-\alpha l)$ se trouve transformé en gain de puissance dans la substance active par passage : $K = \exp(\alpha_0 l)$. De ce fait, le résonateur est régénéré, i.e. son facteur de mérite augmente et sa bande passante diminue. On obtient alors

$$Q = \frac{2\pi l}{\lambda} \frac{\sqrt{RK}}{1 - RK}. \tag{6.4}$$

Il est évident que la formule (6.4) n'est valable que tant que $RK < 1$.

Pour bien montrer en quoi consiste la régénération, considérons un amplificateur optique à transmission muni d'un résonateur de Fabry-Pérot, i.e. un amplificateur à onde progressive contenu dans un résonateur de Fabry-Pérot. Supposons que le signal d'entrée tombe à gauche sur le miroir semi-transparent du résonateur. L'espace compris entre les miroirs est occupé par le milieu actif. Considérons le signal amplifié sortant du résonateur par le miroir semi-transparent de droite, qui est identique au miroir de gauche. On peut calculer le gain correspondant en additionnant les amplitudes des rayons sortant de l'interféromètre après y avoir subi de nombreuses réflexions.

Pour un signal d'entrée d'amplitude unité, le champ à la sortie est donné par la somme

$$E = (1 - R)\sqrt{K} \exp[-j\omega(t - l/c)]\{1 + KR \exp(-2j\omega l/c) + K^2R^2 \exp(-4j\omega l/c) + K^3R^3 \exp(-6j\omega l/c) + \dots\}. \tag{6.5}$$

En calculant la somme de cette progression géométrique en supposant que $RK < 1$, on trouve le gain complexe de l'intensité du champ

$$\Gamma = (1 - R)\sqrt{K} \frac{\exp(j\omega l/c)}{1 - RK \exp(-2j\omega l/c)}. \tag{6.6}$$

Le gain de puissance est donc égal à

$$G = |\Gamma|^2 = \frac{(1 - R)^2 K}{1 - 2RK \cos(4\pi l/\lambda) + R^2K^2}. \tag{6.7}$$

A la résonance, i.e. pour $\cos(4\pi l/\lambda) = 1$,

$$G_0 = \frac{(1 - R)^2 K}{(1 - RK)^2}. \tag{6.8}$$

Lorsque $R = 0$, on réalise le régime de l'onde progressive et $G_0 = K$. Lorsque $R = 1$, le rayonnement incident ne peut pas pénétrer dans l'amplificateur et $G_0 = 0$. Lorsque $K = 1$, il n'y a ni amplification ni pertes et G désigne alors le facteur de transmission de l'étalon de Fabry-Pérot qui est égal à l'unité à la résonance. Lorsque $K \to 1/R$, le gain $G_0 \to \infty$; or cela équivaut à une génération.

Les considérations ci-dessus montrent que c'est la réaction qui détermine la génération. La condition

$$RK = 1 \tag{6.9}$$

exprime en fait la condition énergétique de l'auto-excitation, dont la signification est fort simple : les pertes d'énergie par passage doivent être compensées par le gain réalisé au cours de ce même passage.

On a examiné la régénération d'un résonateur à transmission rempli d'une substance active. Cet amplificateur comportant des miroirs semi-transparents identiques à l'entrée et à la sortie se transforme en générateur lorsque la condition d'auto-excitation $RK = 1$ est réalisée ; ce générateur est également lié à l'espace libre par ses deux extrémités. Comme ce n'est pas toujours commode, les lasers générateurs comportent généralement un seul miroir semi-transparent pour la sortie de l'émission. L'autre miroir est opaque et ne se laisse pas traverser par le rayonnement émis. Dans ces conditions, lorsque l'inversion des populations est réalisée, la régénération concerne l'amplificateur à réflexion, i.e. le dispositif dont le coefficient de réflexion est supérieur à l'unité.

En additionnant, comme dans le cas de l'amplificateur à transmission, les amplitudes des champs à la sortie du système, i.e. les amplitudes des champs ayant subi plusieurs réflexions dans l'amplificateur, on obtient

$$\Gamma = \frac{K \exp(-2j\omega l/c) - \sqrt{K}}{1 - K\sqrt{R} \exp(-j\omega l/c)}. \tag{6.10}$$

Le gain de puissance est

$$G = |\Gamma|^2 = \frac{R - 2K\sqrt{R} \cos(4\pi l/\lambda) + K^2}{1 - 2K\sqrt{R} \cos(4\pi l/\lambda) + K^2 R}. \tag{6.11}$$

A la résonance, i.e. pour $\cos(4\pi l/\lambda) = 1$,

$$G_0 = \left(\frac{K - \sqrt{R}}{1 - K\sqrt{R}}\right)^2. \tag{6.12}$$

Lorsque $R = 1$, le gain est nul, et lorsque $R = 0$, $G_0 = K^2$, ce qui signifie

que l'onde progressive traversant deux fois le milieu actif est amplifiée. La génération apparaît lorsque la condition d'auto-excitation

$$RK^2 = 1 \tag{6.13}$$

est satisfaite.

On peut imaginer plusieurs montages différents pour combiner le système de miroirs et le milieu actif et trouver les conditions d'auto-excitation correspondantes. Dans chaque cas, il faut que le gain réalisé dans la substance active au cours d'un passage efficace du rayonnement à travers le système de miroirs du résonateur et le milieu actif soit supérieur à toutes les pertes d'énergie dans le résonateur au cours de ce même passage. On doit faire figurer dans le bilan général les pertes d'énergie correspondant à l'émission utile et les pertes d'énergie parasites par diffusion, absorption de la lumière, etc.

Procédons à un examen des dénominateurs des formules (6.7) et (6.11). La condition de résonance

$$\cos(4\pi l/\lambda) = 1 \tag{6.14}$$

est équivalente à la condition bien connue de l'établissement d'une onde stationnaire (nombre entier de demi-ondes)

$$l/\lambda = m/2, \quad m = 1, 2, 3, \ldots \tag{6.15}$$

Dans la gamme optique, pour les résonateurs ouverts, la valeur de m est de 10^5 à 10^6. Cette grande valeur de m implique une grande densité des pics de résonance, car la distance entre pics voisins est égale à

$$\delta\lambda = \lambda/2m. \tag{6.16}$$

Il peut arriver, et c'est le cas le plus fréquent, que la largeur de la raie de résonance d'inversion est plus grande que la distance entre les maximums de résonance :

$$\Delta\nu_L/\nu_L > \delta\lambda/\lambda = 1/2m. \tag{6.17}$$

Cela entraîne l'apparition de propriétés particulières chez les lasers concernés, qu'on examinera ultérieurement.

La condition d'auto-excitation $RK = 1$ ou les conditions équivalentes expriment le bilan des amplitudes. Or, pour que s'instaure un régime auto-oscillant, il faut encore que soit assuré le bilan des phases. Les conditions de résonance de la forme (6.14) sont vérifiées pour l'émission de la fréquence à laquelle tous les déphasages se compensent mutuellement. La condition du bilan des phases détermine donc la fréquence de l'émission.

Analysons cette question.

Les propriétés de dispersion du milieu actif déterminent les déphasages dans le milieu actif. On sait que dans le cas de milieux caractérisés par

une absorption (amplification) par résonance, une absorption anomale s'accompagne d'une dispersion anomale. Le déphasage dépendant de la fréquence résulte de ce que la susceptibilité du milieu dépend de la fréquence. L'indice de réfraction est

$$n = \sqrt{\varepsilon} = \sqrt{1 + 4\pi\chi}\,, \tag{6.18}$$

où la susceptibilité diélectrique χ est de la forme

$$\chi = \chi' - j\chi''. \tag{6.19}$$

Lorsque χ' et χ'' sont petits

$$n = 1 + 2\pi\chi' - j2\pi\chi''. \tag{6.20}$$

Cette approximation équivaut à l'approximation des petites pertes (faible gain) d'émission sur une distance d'une longueur d'onde. Si l'on représente une onde plane de fréquence ω (longueur d'onde λ) se propageant le long de la direction z sous la forme

$$E = E_0 \exp[j(\omega t - 2\pi n z/\lambda)] =$$
$$= E_0 \exp(-4\pi^2\chi'' z/\lambda) \exp[j(\omega t - 2\pi(1 + 2\pi\chi' z)/\lambda)], \tag{6.21}$$

on voit aussitôt que la partie imaginaire de la susceptibilité diélectrique détermine les pertes (ou le gain) de l'émission dans la substance et sa partie réelle est responsable du déphasage

$$\alpha = 8\pi^2\chi''/\lambda, \tag{6.22}$$

$$\varphi_L = -4\pi^2\chi' z/\lambda. \tag{6.23}$$

On dispose de méthodes quantomécaniques de calcul de χ, mais on utilisera à nouveau une analogie classique en assimilant le système quantique à deux niveaux et à durée de vie finie du niveau supérieur à un oscillateur classique avec frottement. On sait que l'équation

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_L^2 x = A \exp(j\omega t) \tag{6.24}$$

possède une solution qui décrit des oscillations forcées :

$$x = \frac{A \exp(j\omega t)}{\omega_L^2 - \omega^2 + j\gamma\omega}. \tag{6.25}$$

Il découle de la définition de la susceptibilité diélectrique en tant que coefficient de proportionnalité entre le moment dipolaire de l'unité du volume et l'intensité du champ, que χ est proportionnel au déplacement x dû au champ. En écrivant alors $\omega_L^2 - \omega^2$ sous la forme

$$\omega_L^2 - \omega^2 = (\omega_L + \omega)(\omega_L - \omega) \approx 2\omega_L\delta\omega_L, \tag{6.26}$$

où par définition $\delta\omega_L = \omega_L - \omega$ est la dérive de la fréquence ω de l'émission

par rapport à la fréquence centrale de la raie de transition par résonance ω_L et mettant χ sous la forme (6.19), on obtient

$$\chi' = \frac{2\delta\omega_L}{\Delta\omega_L^2 + 4\delta\omega_L^2} B, \tag{6.27}$$

$$\chi'' = \frac{\Delta\omega_L}{\Delta\omega_L^2 + 4\delta\omega_L^2} B, \tag{6.28}$$

où B est une constante et $\Delta\omega_L = \gamma$. On tient compte des propriétés individuelles du milieu actif en le caractérisant par la quantité α à l'aide de (6.28) et (6.22). On peut alors se débarrasser de B et exprimer le déphasage sous la forme

$$\varphi_L = -\frac{\delta\omega_L}{\Delta\omega_L} \ln G, \tag{6.29}$$

avec $G = \exp(-\alpha z)$.

On voit ainsi que le déphasage qui se produit dans la substance résulte d'une dérive de la fréquence de rayonnement par rapport au centre de la raie. Comme la substance active est placée dans le résonateur, on observe un déphasage sur la courbe de dispersion de ce dernier. Le passage de l'émission à travers le résonateur est décrit par la fonction de transfert du résonateur dépendant de la fréquence. Si l'on ne considère qu'un seul mode oscillatoire, la caractéristique de phase du résonateur est parfaitement équivalente à celle d'un circuit oscillant LCR. Il est bien connu et on démontre aisément à l'aide du circuit équivalent d'un filtre à résonance que le déphasage entre les signaux d'entrée et de sortie peut être représenté sous la forme

$$\operatorname{tg} \varphi_r = Q \frac{1 - \omega^2/\omega_r^2}{\omega^2/\omega_r^2}, \tag{6.30}$$

où Q est le facteur de mérite du résonateur et ω_r sa fréquence propre. En introduisant par définition $\delta\omega_r = \omega_r - \omega$, la dérive de la fréquence d'émission ω par rapport à ω_r, et en supposant que $\delta\omega_r$ est petit, on trouve

$$\varphi_r = \operatorname{arc\,tg}\left(Q2\frac{\delta\omega_r}{\omega_r}\right) \approx Q2\frac{\delta\omega_r}{\omega_r} = 2\frac{\delta\omega_r}{\Delta\omega_r}, \tag{6.31}$$

où $\Delta\omega_r$ est la largeur de la bande passante du résonateur (pour un seul mode). En identifiant les déphasages (6.31) et (6.29), on trouve la condition du bilan des phases déterminant la fréquence d'émission du laser (maser).

Les dérives de la fréquence d'émission par rapport à la fréquence propre du résonateur et à la fréquence de la raie sont liées l'une à l'autre par la relation

$$\frac{\omega_r - \omega}{\Delta\omega_r} = \frac{\omega - \omega_L}{\Delta\omega_L} \ln K, \tag{6.32}$$

où $\ln K = (\ln G)/2$. Autrement dit, la fréquence d'émission

$$\omega = \frac{\omega_r \Delta\omega_L/\ln K + \omega_L \Delta\omega_r}{\Delta\omega_L/\ln K + \Delta\omega_r} \tag{6.33}$$

ne se distingue de la fréquence du résonateur et de la fréquence de la raie que lorsque le résonateur n'est pas exactement accordé sur la raie ($\omega_r \neq \omega_L$). Ce n'est qu'à la limite d'une raie très étroite ou d'un gain très élevé ($\Delta\omega_L/\ln K \to 0$) que $\omega \to \omega_L$. Dans le cas d'une raie très large ($\Delta\omega_L \gg \Delta\omega_r \ln K$), la fréquence d'émission est déterminée par la fréquence propre du résonateur. Ces considérations concernent directement le problème des étalons de fréquence quantiques fondés, d'une part, sur les générateurs moléculaires et, d'autre part, sur les lasers à fréquence d'émission accordable.

La formule (6.33) a été établie, en 1954, par A. Prokhorov pour le générateur moléculaire à l'ammoniac, quoique sous une forme différente, mais son importance avait déjà été soulignée à cette époque. En vue des applications aux lasers, il importe de noter que dans le cas d'une raie large, la fréquence d'émission dépend de l'accord du résonateur. Si la raie est élargie de façon non homogène et recouvre plusieurs modes du résonateur (cf. formule (6.17)), l'émission a lieu sur plusieurs fréquences correspondant à ces modes.

Ainsi, la régénération de l'amplificateur quantique résultant de la mise en œuvre de la réaction, que l'on réalise en disposant l'amplificateur dans un résonateur, conduit à son auto-excitation et en fait un générateur. L'étude du gain de l'amplificateur régénéré a permis de déterminer la condition d'auto-excitation, i.e. de trouver la valeur du gain minimal par passage nécessaire pour qu'apparaisse une génération (seuil d'auto-excitation). L'étude des relations de phase lors de l'auto-excitation a permis de déterminer la fréquence d'émission. La théorie linéaire ne peut donner aucun autre résultat. On n'arrive à trouver l'amplitude de l'émission qu'en tenant compte du caractère non linéaire de l'amplification, i.e. dans le cadre d'une théorie non linéaire.

Considérons maintenant la question de la puissance de sortie des générateurs lasers. Comme dans le cas des amplificateurs quantiques, le rôle principal revient ici à l'effet de saturation et aux pertes d'émission.

Soit un laser doté d'un miroir opaque parfaitement réfléchissant et d'un miroir de sortie semi-transparent avec $T = 1 - R$. Dans le résonateur du laser, la radiation à amplifier se propage à travers le milieu actif placé entre les miroirs sous forme de trains d'ondes progressives d'amplitudes croissantes que l'on supposera planes. Ecrivons les équations de transport pour des ondes se propageant de gauche à droite et de droite à gauche :

$$\frac{dJ^{(+)}}{dz} = -\beta J^{(+)} + \frac{\alpha_0 J^{(+)}}{1 + J^{(+)} + J^{(-)}},$$

$$-\frac{dJ^{(-)}}{dz} = -\beta J^{(-)} + \frac{\alpha_0 J^{(-)}}{1 + J^{(+)} + J^{(-)}}. \tag{6.34}$$

Dans ces expressions, les intensités sont données en unités de l'intensité de saturation ($J = I/I_S$), les indices $\pm$ servant à distinguer les ondes se propageant en sens inverses. On admet, en outre, qu'en toute section arbitraire z l'effet de saturation dépend des intensités moyennes totales des flux d'énergie allant de gauche à droite et de droite à gauche, ce qui implique qu'on néglige l'influence qu'exerce la structure de mode du champ d'émission dans le résonateur sur l'effet de saturation.

Le système d'équations (6.34) est illustré par le schéma de la figure 6.1. Notons $J^{(+)}(0) = J_1$, $J^{(-)}(0) = J_2$ les valeurs de J sur la frontière $z = 0$. On pose aussi $R(0) = R$ et $R(l) = 1$. La condition de l'émission stationnaire implique alors les conditions aux limites

$$J_1 = RJ_2, \quad J^{(-)}(l) = J^{(+)}(l) = J_0. \tag{6.35}$$

L'intensité de sortie est

$$J_{\text{sort}} = J_2 - J_1 = (1 - R)J_2 = \frac{1 - R}{R} J_1. \tag{6.36}$$

Divisons l'une par l'autre les équations (6.34) :

$$\frac{dJ^{(+)}}{dJ^{(-)}} = -\frac{J^{(+)}}{J^{(-)}}. \tag{6.37}$$

L'intégration donne

$$J^{(+)}J^{(-)} = \text{const}. \tag{6.38}$$

Comme pour $z = l$ $J^{(+)} = J^{(-)} = J_0$, on a const $= J_0^2$. Par conséquent, les équations (6.34) ont pour l'intégrale

$$J^{(+)}J^{(-)} = J_0^2, \tag{6.39}$$

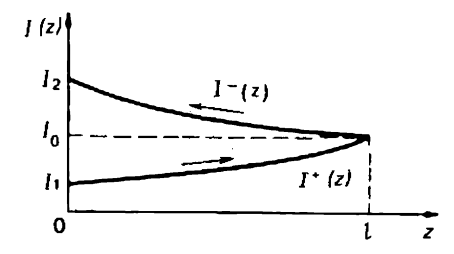


Fig. 6.1. Distribution des intensités des ondes se propageant à la rencontre l'une de l'autre dans un résonateur du laser de longueur l. De gauche à droite se propage le rayonnement d'intensité $I^+(z)$ et de droite à gauche le rayonnement d'intensité $I^-(z)$.

où J_0 est l'intensité qui tombe sur le miroir opaque de droite. Cette intensité est liée par une relation simple à l'intensité de sortie. En effet, comme

$$J_1 = J_{sort}R/(1 - R), \quad J_2 = J_{sort}/(1 - R),$$

on a

$$J_1J_2 = J_0^2 = J_{sort}^2R/(1 - R)^2.$$

Par suite,

$$J_0 = \frac{\sqrt{R}}{1 - R} J_{sort}. \tag{6.40}$$

La marche ultérieure de la résolution du problème se fait selon le schéma suivant. Ecrivons $J^{(-)}$ sous la forme $J^{(-)} = J_0^2/J^{(+)}$ et substituons cette expression dans la première des équations (6.34) ; en omettant l'indice +, on obtient l'équation

$$\frac{dJ}{dz} = -\left(\beta - \frac{\alpha_0 J}{J + J^2 + J_0^2}\right)J, \tag{6.41}$$

qui se laisse intégrer à l'aide de fonctions élémentaires.

Il serait instructif de voir comment l'existence de la réaction et d'une onde de retour modifie le terme déterminant l'amplification et la saturation par rapport au cas où il n'y a qu'une seule onde progressive $\alpha/(1 + J)$ (cf. formule (5.17)). La forme compliquée de (6.41) fait que sa solution est donnée par une équation algébrique transcendante, qui se prête mal à l'interprétation et à l'analyse.

Dans le cas particulier d'une forte saturation et d'un important excès d'amplification par rapport aux pertes ($\alpha_0/\beta \gg 1$, $J \gg 1$)

$$J_{sort} = \frac{\alpha_0}{\beta}(1 - R)\frac{1 + \exp(-\beta l)}{1 - R\exp(-\beta l)}, \tag{6.42}$$

et pour $l \to \infty$

$$I_{sort} \to (1 - R)\frac{\alpha_0}{\beta} I_S. \tag{6.43}$$

Comme on suppose que la longueur du générateur est infiniment grande, cette expression ne présente aucun optimum par rapport à la valeur de R. L'intensité maximale qu'on pourrait obtenir est

$$I_{sort}^{max} = \frac{\alpha_0}{\beta} I_S, \tag{6.44}$$

résultat qui coïncide, comme de bien entendu, avec le cas de l'amplificateur (cf. (5.26)).

Dans le cas particulier opposé d'un générateur relativement court ($\beta l \ll 1$), on doit s'attendre à ce que les intensités $J^{(+)}$ et $J^{(-)}$ des deux

ondes augmentent linéairement avec z. Dans ce cas, $J^{(+)} + J^{(-)} = \text{const} = J$ et les équations initiales (6.34) s'écrivent maintenant sous la forme

$$\frac{dJ^{(+)}}{J^{(+)}} = \left(-\beta + \frac{\alpha_0}{1+J}\right)dz, \quad \frac{dJ^{(-)}}{J^{(-)}} = \left(\beta - \frac{\alpha_0}{1+J}\right)dz \qquad (6.45)$$

et se laissent facilement intégrer.

On trouve ainsi que l'intensité de sortie du générateur atteint sa plus grande valeur

$$I_{\text{sort}}^{\max} = \alpha_0 l(1 - \sqrt{\beta/\alpha_0})^2 I_S \qquad (6.46)$$

lorsque la transmittance du miroir de sortie possède sa valeur optimale

$$T_{\text{opt}} = 1 - R_{\text{opt}} = 2\alpha_0 l(\sqrt{\beta/\alpha_0} - \beta/\alpha_0). \qquad (6.47)$$

La valeur du couplage optimal dépend du coefficient de pertes β plus fortement que la puissance de sortie maximale correspondant à ce couplage. Pour $\alpha_0 = 10^{-3}\,\text{cm}^{-1}$, $l = 10^2\,\text{cm}$ et $\beta = 10^{-4}\,\text{cm}^{-1}$, $T_{\text{opt}} = 0{,}042$ et $I_{\text{sort}}^{\max} = 0{,}07\,I_S$. Cet exemple montre que les exigences auxquelles doivent satisfaire les miroirs pour les lasers à petit gain, ce qui est le cas des lasers à gaz, sont très sévères. Pour un couplage aussi lâche, seule une petite partie de l'intensité d'émission accumulée arrive à sortir du résonateur. Avec les valeurs des paramètres indiquées ci-dessus, l'intensité de l'émission tombant de l'intérieur sur le miroir opaque du résonateur est près de 20 fois plus grande que l'intensité de sortie (cf. formule (6.40)). Lorsque les gains sont plus importants, la situation devient plus simple.

On notera que la majorité des lasers de puissance moyenne fonctionnent dans les conditions déterminées par les formules (6.46) et (6.47).

Il convient de faire remarquer une fois de plus que tandis que les conditions d'auto-excitation (6.9) (ou la formule équivalente (6.13)) du laser générateur ont été établies à l'aide de la théorie linéaire, l'amplitude (l'intensité) de l'émission a été trouvée à l'aide de la théorie non linéaire. Ce dernier résultat est un cas particulier de la situation générale qui prévaut en théorie des vibrations : l'amplitude des vibrations permanentes qui apparaissent dans un système auto-oscillant dont les conditions d'auto-excitation sont satisfaites, est définie par la théorie non linéaire tenant compte des effets non linéaires dans les équations initiales. En électronique quantique, l'effet non linéaire est l'effet de saturation.

Ainsi, un laser générateur ayant un rapport β/α_0 petit et un couplage optimal a une intensité d'émission égale à $\alpha_0 l I_S$. Cela signifie que toute l'énergie accumulée dans la substance active du laser est émise dans le milieu extérieur. C'est un résultat fort important. On peut le généraliser en procédant à une estimation de la puissance émise par le résonateur du

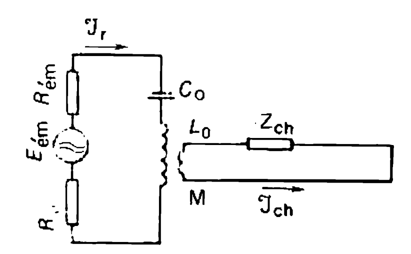


Fig. 6.2. Circuit équivalent d'un résonateur de laser contenant une substance active en état d'émission.

laser dans le milieu extérieur en se fondant sur le schéma équivalent à constantes localisées du laser.

Représentons le résonateur du laser par un circuit résonnant RLC (fig. 6.2). La substance active déterminant l'émission est équivalente à un générateur de f.é.m. $E_{ém}$, de résistance interne $R_{ém}$, branché dans un circuit oscillant série R_0, L_0, C_0. On représentera l'émission envoyée dans le milieu extérieur par un couplage inductif de ce circuit oscillant avec une longue ligne accordée. Soient Z_{ch} l'impédance de charge de la ligne et M le coefficient d'inductance mutuelle du circuit de couplage.

La puissance émise par la substance est liée par une relation simple

$$P_{ém} = E_{ém}^2/4R_{ém} \tag{6.48}$$

avec la f.é.m. et la résistance interne du générateur. A la fréquence de résonance, le schéma équivalent est décrit par les équations de Kirchhoff

$$0 = Z_{ch}\mathcal{I}_{ch} + j\omega M\mathcal{I}_r, \quad E_{ém} = \mathcal{I}_r(R_{ém} + R_0) + j\omega M\mathcal{I}_{ch}. \tag{6.49}$$

En éliminant entre ces équations le courant dans le résonateur $\mathcal{I}_r$, on trouve l'expression du courant $\mathcal{I}_{ch}$ passant par la charge :

$$\mathcal{I}_{ch} = -j\frac{\omega M}{Z_{ch}}\frac{1}{\omega_0 L}\frac{E_{ém}}{1/Q_0 + 1/Q_{coup} + 1/Q_{ém}}, \tag{6.50}$$

où on a utilisé les notations du facteur de surtension du couplage

$$Q_{coup} = \frac{\omega L_0}{\omega^2 M^2/Z_{ch}}, \tag{6.51}$$

du facteur de surtension propre du résonateur

$$Q_0 = \omega L_0/R_0, \tag{6.52}$$

et du facteur de surtension lié à la résistance interne du générateur de f.é.m.

$$Q_{ém} = \omega L_0/R_{ém}. \tag{6.53}$$

La puissance dissipée dans la résistance de charge est égale à

$$P_{ch} = Z_{ch}|\mathcal{I}_{ch}|^2 = \frac{1/Q_{coup}Q_{ém}}{(1/Q_0 + 1/Q_{coup} + 1/Q_{ém})^2}\,4P_{ém}. \tag{6.54}$$

Le fait d'exprimer la puissance de sortie à l'aide de la puissance générée par la source de f.é.m. dans un circuit, en faisant intervenir les facteurs de surtension définis par les formules (6.51) à (6.53) bien connues en théorie des circuits résonnants et ayant une signification énergétique très générale (cf. (6.1)), confère à cette relation un caractère assez général.

On peut optimiser la puissance de sortie en modifiant le couplage avec le milieu extérieur. La formule (6.54) permet de trouver la puissance de sortie maximale

$$P_{ch}^{max} = \frac{1/Q_{ém}}{1/Q_0 + 1/Q_{ém}} P_{ém}, \tag{6.55}$$

que l'on obtient par le couplage optimal défini par

$$(1/Q_{coup})_{opt} = 1/Q_0 + 1/Q_{ém}. \tag{6.56}$$

Lorsqu'on peut négliger les pertes dans le résonateur ($1/Q_0 \ll 1/Q_{ém}$) et lorsque les conditions du couplage sont optimales, toute la puissance émise est envoyée dans la charge utile. En fait, la boucle de couplage du résonateur avec la ligne joue le rôle d'un transformateur d'impédances qui assure l'adaptation de la résistance interne de la source à la résistance de la charge utile. Dans le cas du laser, ce rôle est assumé par le miroir de sortie semi-transparent qui accorde la substance active du résonateur à l'espace libre.

Du point de vue de la physique, l'émission laser est le fait de l'émission d'un milieu à inversion de population. L'intensité d'émission dépend de la densité d'inversion de population. Pour se faire une idée de ce que peut fournir un milieu actif, surtout lorsqu'il s'agit de lasers de grande puissance, on fera appel à quelques considérations simples. Posons que dans les conditions stationnaires le taux d'inversion soit de Λ particules par unité de volume et par unité de temps. Le maximum de la puissance d'émission par unité de volume est alors

$$P_l = \Lambda h\nu. \tag{6.57}$$

Cette relation simple appliquée au laser à CO_2 ($\lambda = 10{,}6\,\mu m$) conduit aux résultats suivants : pour un débit massique M[kg/s] de gaz excité la puissance d'émission maximale est égale à 250 M[kW], ce qui correspond à une puissance de 250 kW pour un débit massique de 1 kg/s.

Pour les lasers pulsés, l'énergie d'émission dépend de l'énergie emmagasinée dans la substance active à l'instant où commence l'émission, i.e. de l'inversion réalisée à cet instant. Comme l'émission cesse lorsque l'inversion disparaît, i.e. lorsque les populations des niveaux supérieur et inférieur s'égalisent, à une inversion de N particules correspond une énergie d'émission

$$E_{ém} = Nh\nu/2. \tag{6.58}$$

Pour un laser à CO_2 cela correspond à 125 kJ par 1 kg de CO_2 excité.

Septième leçon. LES RÉSONATEURS OUVERTS

Les résonateurs en électronique. Passage aux ondes courtes. Baisse du facteur de surtension accompagnant la concentration des pics de résonance dans les cavités fermées. Les résonateurs ouverts et éclaircissement du spectre. Le nombre de Fresnel. Les modes. Durée de vie des modes d'un résonateur passif. Pertes de diffraction. Méthode de Fox et Lee. Equation intégrale du résonateur ouvert.

De ce qui précède on peut conclure qu'à la base de l'électronique quantique on trouve un milieu actif à population inversée soumis à une réaction positive qui est réalisée par l'effet d'émission stimulée dans le résonateur. Dans cette combinaison du milieu actif, de l'émission stimulée et du résonateur, le milieu actif emmagasine de l'énergie et amplifie l'émission générée, l'émission stimulée assure la cohérence de l'amplification et le résonateur détermine les propriétés spectrales et spatiales de l'émission générée.

L'électronique quantique, tout au moins par ses origines, fait partie de l'électronique, actuellement c'est la branche optique de l'électronique. Il est bien connu qu'en électronique classique des rayonnements de la gamme des ondes longues et de la gamme UHF, la principale caractéristique des radiations monochromatiques est la fréquence. La valeur de la fréquence est fixée par le circuit résonnant. Dans le cas des ondes longues, on utilise des circuits à courant alternatif quasi stationnaires, i.e. des circuits à constantes localisées. Il s'ensuit que les dimensions des circuits résonnants correspondants sont beaucoup plus petites que la longueur d'onde des radiations produites. Lorsqu'on passe à la gamme UHF, en raison du grand raccourcissement des longueurs d'onde les circuits deviennent essentiellement non stationnaires, i.e. ondulatoires. Pour pouvoir canaliser l'énergie de cette gamme de longueurs d'onde on utilise différents types de guides d'onde — coaxiaux, tubulaires creux, diélectriques. Des segments de guides d'onde, dûment court-circuités et spatialement arrangés, conformément à l'électrodynamique UHF et à la distribution escomptée des champs, constituent les résonateurs UHF.

Les résonateurs les plus connus sont les cavités résonnantes métalliques. Les pertes sur les parois sont faibles lorsque le coefficient de réflexion des métaux bons conducteurs est grand et le facteur de mérite est alors grand. La configuration et la distribution des champs dans les résonateurs UHF sont nettement différentes de celles qui existent dans l'espace libre. Comme les dimensions linéaires de ces résonateurs sont comparables à la longueur d'onde, le spectre des vibrations propres des résonateurs est raréfié. En règle générale, il est assez facile de fabriquer dans la gamme UHF des configurations de cavités résonnantes telles que la cavité possède une seule vibration propre dans une large gamme de fréquences. Les résonateurs UHF déterminent la fréquence de l'émission des systèmes auto-oscillants UHF.

En général, les ondes longues sont rayonnées dans l'espace extérieur sans aucune directivité, de façon presque isotrope. A mesure que la longueur d'onde diminue, surtout lorsqu'on atteint la gamme UHF, il devient possible d'assurer une distribution spatialement anisotrope de l'émission ; en électronique on dit qu'on réalise un diagramme d'émission directionnel. La réalisation pratique de ces diagrammes est assurée par des systèmes d'antennes qui sont extérieurs au générateur UHF ; ces systèmes d'antennes sont du type interférentiel et aux ondes encore plus courtes ils sont du type quasi optique, mais leurs dimensions sont toujours beaucoup plus grandes que la longueur d'onde. A titre d'exemples, on peut citer les systèmes d'antennes des radars, ou ceux du système de liaison par satellite « Orbita », etc.

Lorsque la fréquence augmente encore, on arrive à la gamme submillimétrique ou à la gamme infrarouge, et la fabrication de cavités résonnantes de dimensions comparables à la longueur d'onde devient pratiquement impossible. Il faut utiliser alors des résonateurs ayant des dimensions beaucoup plus grandes que la longueur d'onde. Il en a été déjà question dans la leçon précédente à l'occasion des conditions d'auto-excitation des lasers et de la fréquence d'émission. Dans un résonateur ayant des dimensions linéaires beaucoup plus grandes que la longueur d'onde, il existe tout un ensemble de directions de propagation des radiations. La réaction y est assurée par l'effet d'émission stimulée de photons ayant tous la même fréquence, la même polarisation, la même direction de propagation, ayant donc même ω et même $\mathbf{k}$. Il s'ensuit que le résonateur détermine le bilan des phases dans l'espace quadridimensionnel ωt et $\mathbf{kr}$, $\mathbf{r}$ étant un rayon vecteur. Cela signifie que ces résonateurs déterminent la fréquence d'émission quadridimensionnelle ou un ensemble de ces fréquences. La conséquence en est qu'en électronique quantique, le résonateur détermine simultanément la fréquence des vibrations et la direction de propagation de l'émission générée ; il détermine donc les caractéristiques temporelles et spatiales de l'émission, ces caractéristiques étant intimement liées l'une à l'autre.

Par conséquent, dans la gamme optique, on utilise des résonateurs ayant des dimensions linéaires beaucoup plus grandes que la longueur d'onde. Il convient de remarquer qu'il ne s'agit pas seulement de difficultés technologiques de fabrication de cavités résonnantes de dimensions micrométriques ou submicrométriques, ou encore de la petitesse du volume de ces cavités et donc de la petitesse de l'énergie et de la puissance d'émission. La raison en est qu'à mesure que les dimensions des cavités métalliques diminuent proportionnellement à la longueur d'onde, le facteur de mérite de ces cavités diminue. On démontre dans les cours d'électrodynamique UHF que le facteur de mérite d'une cavité métallique dépend du rapport d'une dimension linéaire caractéristique a de la cavité à la profondeur de pénétration δ du champ de rayonnement dans le métal:

$$Q = a/\delta. \tag{7.1}$$

Dans le cas de l'effet de peau normal, la profondeur de pénétration du champ dans le métal est inversement proportionnelle à la racine carrée de la fréquence : $\delta \propto \nu^{-1/2}$. Par hypothèse, la dimension linéaire des cavités résonnantes s'adapte à la longueur d'onde ; par conséquent, $a \propto \nu^{-1}$. On a donc $Q \propto \nu^{-1/2}$, ce qui indique que même dans le cas invraisemblable où toutes les autres conditions resteraient les mêmes, le facteur de mérite diminue brusquement lorsqu'on passe de la gamme UHF à la gamme optique.

Il faut donc utiliser des résonateurs ayant des dimensions linéaires qui sont grandes par rapport à la longueur d'onde. Il faut cependant tenir compte d'une circonstance particulière. Dans une cavité dont les dimensions sont grandes par rapport à la longueur d'onde, le nombre d'oscillateurs de champ contenus dans l'unité de volume et dans l'unité d'intervalle spectral est le même que dans l'espace libre. Ce nombre égal à

$$n = 8\pi\nu^2/c^3 \tag{7.2}$$

a été introduit dès la première leçon à propos des probabilités de l'émission spontanée et de l'émission stimulée (voir par exemple (1.12)). Dans un volume V et dans un intervalle de fréquence $\Delta\nu$, le nombre total d'oscillateurs est

$$N = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}\, V\Delta\nu. \tag{7.3}$$

L'intervalle de fréquence revenant à un oscillateur (la vibration propre d'une cavité) est donné par

$$\Delta\nu/N = c^3/8\pi V\nu^2 \propto 1/\nu^2, \tag{7.4}$$

ce qui montre qu'il diminue en raison inverse de ν^2. D'autre part, la largeur de la bande des fréquences revenant à une vibration dépend de son facteur de mérite Q.

Dans le cas d'une cavité de grandes dimensions, la quantité a figurant dans (7.1) ne dépend pas de la fréquence ($a \approx V^{1/3}$) et dans le cas d'un effet de peau normal, Q est proportionnel à $\nu^{1/2}$. Il s'ensuit que la largeur $\Delta\nu_v$ de la courbe de résonance de la vibration correspondante est proportionnelle à $\nu^{1/2}$:

$$\Delta\nu_v = \nu/Q \propto \nu^{1/2}. \tag{7.5}$$

La comparaison de (7.4) et (7.5) montre que lorsque la fréquence ou le volume augmente, les courbes de résonance d'une cavité se chevauchent. Or cela signifie que le résonateur perd ses qualités de résonance.

Dans la gamme optique, on ne peut plus utiliser des cavités résonnantes ayant des dimensions de l'ordre de la longueur d'onde, d'une part, par suite

des difficultés de fabrication et, d'autre part, du fait de la chute du facteur de mérite ; on ne peut utiliser ici des cavités résonnantes métalliques qui sont grandes par rapport à la longueur d'onde du fait de la haute densité de leurs vibrations propres puisqu'elles perdent alors leurs propriétés de résonance. Il faut disposer de résonateurs de grandes dimensions avec un spectre raréfié de vibrations propres.

Le procédé de raréfaction du spectre des vibrations propres des résonateurs de grand volume avec conservation d'un grand facteur Q, qui est le plus utilisé parce que particulièrement avantageux, consiste à utiliser des résonateurs ouverts.

Considérons un résonateur ouvert constitué de deux disques plans de rayon a, disposés à une distante l parallèlement l'un à l'autre, perpendiculairement à un axe commun et ayant tous deux un facteur de réflexion $R \leqslant 1$. Pour faire une estimation simple des propriétés de ce résonateur, on admet qu'un système d'ondes planes se propage entre les deux disques. C'est ce qu'on avait fait dans la leçon 6 pour établir la formule (6.2) du facteur de mérite de ce résonateur. On y avait noté que l'effet exercé par les deux surfaces réfléchissantes peut être assimilé à un accroissement de $1/(1 - R)$ fois du chemin l parcouru par l'onde plane. Cet accroissement efficace du chemin s'interprète de la façon suivante : l'onde plane considérée est amortie de e fois après $1/(1 - R)$ réflexions.

En plus de l'onde se propageant suivant une direction rigoureusement perpendiculaire au plan des disques, d'autres ondes se propageant suivant des directions presque normales aux disques peuvent apparaître dans l'espace compris entre ces derniers. Si une onde plane se propageant suivant une direction faisant un certain angle avec l'axe du résonateur arrive à subir $1/(1 - R)$ réflexions avant de s'échapper du résonateur, le facteur Q de la résonance correspondante est près de deux fois plus petit que dans le cas d'une propagation normale. Par conséquent, l'angle

$$\theta = 2a(1 - R)/l \tag{7.6}$$

représente l'angle maximal des directions de propagation des ondes dans le résonateur correspondant à des vibrations ayant un grand facteur Q. Parmi toutes les vibrations (7.3) seules celles dont les ondes ont des directions de propagation contenues dans un angle solide $\Omega = \pi\theta^2$ ont des facteurs Q suffisamment grands.

En multipliant (7.3) par le rapport $\Omega/4\pi$, on obtient après quelques réarrangements le nombre total des vibrations de grands Q dont les fréquences sont contenues dans la bande $\Delta\nu$:

$$N_0 = 32\pi^2 \frac{a^4(1 - R)^2}{\lambda^3 l} \frac{\Delta\nu}{\nu}. \tag{7.7}$$

où $\lambda = c/\nu$ est la longueur d'onde. En termes de longueurs d'onde la formule (7.3) s'écrit

$$N = 32\pi^2 \frac{a^2 l}{\lambda^3} \frac{\Delta\nu}{\nu}. \tag{7.8}$$

En comparant les formules (7.7) et (7.8), on voit que le nombre de vibrations propres du résonateur ouvert contenues dans l'unité d'intervalle spectral diminue de $l^2/a^2(1-R)^2 \gg 1$ fois. Cette raréfaction du spectre des vibrations propres résulte de ce que le résonateur ouvert n'a pas de parois latérales.

Ecrivons (7.7) sous une autre forme. Conformément à (7.7), l'intervalle de fréquence revenant à une vibration du résonateur ouvert est égal à

$$\frac{\Delta\nu}{N_0} = \frac{\lambda^3 l\nu}{32\pi^2 a^4 (1-R)^2}. \tag{7.9}$$

D'autre part, la largeur $\Delta\nu_v$ de la bande de fréquence revenant à une vibration dépend de son facteur Q défini par la formule (6.2) :

$$\Delta\nu_v = \frac{\nu}{Q} = \frac{\lambda\nu(1-R)}{2\pi l}. \tag{7.10}$$

Les courbes de résonance de vibrations différentes ne se recouvrent pas lorsque le rapport

$$\frac{\Delta\nu_v}{\Delta\nu/N_0} = 16\pi N_F^2 (1-R)^3 < 1 ; \tag{7.11}$$

on a utilisé ici la notation du nombre de Fresnel

$$N_F = a^2/l\lambda. \tag{7.12}$$

Les considérations ci-dessus correspondent à l'approximation de l'optique géométrique et négligent totalement les effets de diffraction. Le critère de validité de l'optique géométrique est $N_F > 1$. Rappelons qu'en fait c'est cette condition qu'on avait utilisée dans la leçon 5 pour établir la formule (5.14) de la densité spectrale efficace des bruits d'entrée de l'amplificateur quantique d'ondes progressives. La formule (7.11) montre que lorsque les miroirs du résonateur ouvert ont une réflectivité suffisante, i.e. lorsque le facteur Q du résonateur est suffisamment grand, le spectre des vibrations propres peut être convenablement raréfié même dans le cas de nombres de Fresnel importants.

Par conséquent, les résonateurs ouverts sont des dispositifs de résonance commodes pour les besoins de l'électronique quantique dans la gamme optique. Les vibrations propres (types de vibration) du résonateur sont appelées modes du résonateur. Par définition, le mode d'un résonateur caractérise la distribution du champ dans le résonateur, qui se reproduit lors de chaque trajet de l'onde entre les miroirs. L'existence de pertes d'éner-

gie entraîne l'amortissement des vibrations correspondant à des modes déterminés, à moins que ceux-ci ne soient entretenus par l'émission du milieu actif.

Supposons qu'on puisse décrire les pertes d'énergie d'une émission, se propageant entre les miroirs sous forme d'un certain mode vibratoire du résonateur, par un coefficient d'absorption équivalent α :

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I. \tag{7.13}$$

La quantité α dépend des pertes par absorption et par diffusion de la lumière par le milieu se trouvant entre les miroirs, ainsi que des pertes par diffraction et par réflexion. Il est commode de représenter cette quantité par le rapport $\alpha = A/l$, où A est le coefficient d'absorption de l'énergie d'émission par trajet entre les miroirs d'un résonateur de longueur l. En introduisant la densité d'énergie $\varrho = I/c$ et en remarquant que $dz = c\,dt$, on obtient l'équation

$$\frac{d\varrho}{dt} = -\frac{Ac}{l}\varrho, \tag{7.14}$$

dont la solution

$$\varrho = \varrho_0 \exp\left[-\frac{Ac}{l}t\right] = \varrho_0 \exp\left[-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}}\right] \tag{7.15}$$

montre que les vibrations propres du résonateur s'amortissent de façon exponentielle avec un temps caractéristique

$$\tau_{\text{eff}} = l/Ac = 1/\alpha c. \tag{7.16}$$

Le temps τ_{eff}, appelé durée de vie du photon dans un mode donné, est lié au facteur Q de ce mode par une relation simple. Par définition (6.1)

$$Q = 2\pi \frac{\varrho_0}{\varrho_0(1 - \exp[-T/\tau_{\text{eff}}])} = 2\pi\frac{\tau_{\text{eff}}}{T} = \omega\tau_{\text{eff}}, \tag{7.17}$$

où T désigne la période des vibrations propres du mode considéré ; pour tous les modes dont le facteur de qualité est assez bon, $T \ll \tau_{\text{eff}}$. A chaque type de pertes correspond une durée de vie et, comme les pertes s'additionnent, la durée de vie résultante du mode est donnée par la relation évidente :

$$1/\tau_{\text{eff}} = \sum 1/\tau_{\text{eff}}^{(i)}. \tag{7.18}$$

Une expression analogue s'applique au facteur de qualité :

$$1/Q = \sum 1/Q^{(i)}, \tag{7.19}$$

l'indice i désignant le type de pertes d'énergie caractérisant le facteur de qualité partiel (la durée de vie) correspondant.

Dans le cas des résonateurs ouverts, la question des pertes par diffraction présente une importance particulière. On doit remárquer tout d'abord

que ce sont les pertes par diffraction qui déterminent la raréfaction du spectre des vibrations propres lorsqu'on passe d'une cavité résonnante à un résonateur ouvert ; ce sont ces pertes qui éliminent, au cours du processus d'établissement du mode de résonance, les vibrations qui se propagent suivant des directions faisant des angles notables avec l'axe du résonateur. C'est l'existence des pertes par diffraction qui distingue les résonateurs ouverts de la gamme optique des cavités résonnantes UHF. Il est bien entendu que ce n'est pas la seule cause de pertes et, bien souvent, ce n'est pas la cause principale, mais dans le cas de miroirs parfaits et d'un milieu parfait disposé entre les miroirs, les pertes d'énergie déterminées par la diffraction par les bords de miroirs ayant une ouverture finie ne peuvent être éliminées par principe et constituent donc une cause de pertes particulièrement importante.

Il est évident qu'on ne peut tenir compte des pertes par diffraction dans le cadre de l'approche de l'optique géométrique à l'étude des résonateurs ouverts. L'optique géométrique s'applique pour les grands nombres de Fresnel $N_F = a^2/l\lambda$. On peut donc s'attendre à ce que ce paramètre détermine la grandeur des pertes. Une évaluation grossière peut être faite dans l'hypothèse d'ondes planes. Selon Young, on peut considérer la diffraction par le bord d'un écran comme une diffusion transversale de l'amplitude du champ lumineux dans la plage obscure. A une distance l de l'écran, la zone de diffusion s'étend sur une distance égale à $\sqrt{l\lambda}$. Par conséquent, si un faisceau lumineux contenant une onde presque plane est réfléchi, par exemple, par le miroir de gauche ayant un rayon a, et qui parvient après un trajet de longueur l jusqu'au miroir de droite ayant lui aussi un rayon a, ce faisceau subira une dilatation suivant son rayon égale à $\sqrt{l\lambda} \ll a$. Les radiations qui tombent dans un anneau d'aire égale à $2\pi a\sqrt{l\lambda}$ s'échappent du résonateur. Si la distribution de l'amplitude du champ lumineux sur la section du faisceau est uniforme, la part relative de l'émission ainsi perdue est égale à $2\sqrt{l\lambda}/a$. En élevant cette quantité au carré, on obtient une estimation des pertes d'énergie par diffraction par trajet

$$A_{\mathrm{diffr}} = 4l\lambda/a^2 = 4/N_F. \qquad (7.20)$$

Plus le nombre de Fresnel est grand, plus les pertes de diffraction sont petites. L'estimation ci-dessus, qui ne vaut que pour de grands N_F, ne permet que de se faire une idée de l'allure de la dépendance des pertes de diffraction en fonction de N_F. En réalité, aux modes du résonateur correspondent des distributions du champ sur la section droite du faisceau, qui sont loin d'être homogènes et présentent des chutes marquées près des bords. De ce fait, les pertes de diffraction sont notablement plus petites que celles que donne la formule (7.20).

La question des pertes de diffraction dans les résonateurs ouverts est intimement liée à la question de la stabilité des modes. En effet, les pertes de diffraction empêchent que la totalité de l'énergie de l'émission initiale retourne dans le résonateur à chaque passage entre les miroirs et à chaque réflexion dans un des miroirs. Il est donc parfaitement légitime de se demander si la distribution du champ dans le résonateur tend, après plusieurs passages, vers un état stationnaire se reproduisant à chaque nouveau passage de l'onde ; cela revient à se demander s'il existe un mode vibratoire défini dans un résonateur ouvert. Cette question est tout naturellement liée à la question du nombre de modes possibles, ainsi qu'à celles de l'existence de différences entre les configurations du champ de chaque mode et des pertes correspondantes.

La solution de ces problèmes fut trouvée en 1960-1961 par A. Fox et T. Lee qui élaborèrent un schéma de formation des modes propres d'un résonateur ouvert par étude des variations que subissent l'amplitude et la phase d'une onde initialement plane après plusieurs passages successifs à travers le résonateur.

Supposons qu'une onde homogène plane parte du miroir de gauche pour se diriger vers le miroir de droite. A mesure de sa propagation et avant d'arriver au miroir de droite, une partie de son énergie se perd par effet de diffraction à la périphérie de la région occupée par l'onde. C'est encore la partie périphérique de l'onde réfléchie qui s'affaiblit à la réflexion. Au cours de sa propagation de droite à gauche, l'onde réfléchie perd de l'énergie d'une façon semblable. A la suite d'un grand nombre de trajets, le champ sur les bords du front d'onde se trouve affaibli.

Pour effectuer des calculs, on admet qu'une distribution initiale arbitraire du champ près du miroir de gauche sert de source pour le champ qui apparaît près du miroir de droite après un parcours de l'onde. La distribution calculée est alors utilisée pour refaire le même calcul et trouver la nouvelle distribution du champ près du miroir de gauche après un second trajet. On répète ces calculs pour un grand nombre de trajets successifs.

Pour calculer le champ électromagnétique près d'un miroir sous la forme de l'intégrale du champ régnant près de l'autre miroir, on utilise la forme scalaire du principe de Huygens. Cette approche est justifiée si les dimensions des miroirs sont grandes par rapport à la longueur d'onde, si le champ est proche d'un champ électromagnétique transversal et s'il présente une polarisation rectiligne.

Les calculs ont été effectués sur ordinateur. On trouva qu'après un grand nombre de réflexions (près de 300), la distribution du champ près des miroirs devenait stationnaire avec une amplitude décroissant vers les bords des miroirs. On a trouvé que les pertes par diffraction étaient effectivement de plusieurs ordres de grandeurs plus petites que celles données par la for-

mule (7.20). La courbe des pertes par diffraction, qui a été calculée sur ordinateur pour un large éventail de valeurs du nombre de Fresnel, se laisse représenter en approximation par la fonction

$$A_{\text{diffr}} = ae^{-bN_F}. \tag{7.21}$$

Dans le cas particulier très important du résonateur dit à foyer commun qu'on décrira dans la leçon suivante, on trouve pour son mode principal $a \approx b \approx 10$, ce qui correspond à des pertes par diffraction infimement petites, surtout pour N_F grand.

Les résultats du calcul sur ordinateur confirment l'idée intuitive qu'après un grand nombre de trajets la distribution du champ près des miroirs ne se modifie que très peu à chaque nouvelle réflexion. En régime stationnaire, les champs près des miroirs sont les mêmes à une constante complexe près. Dans ces conditions, en exprimant le champ régnant près d'un miroir en fonction du champ régnant près de l'autre miroir à l'aide du principe de Huygens exprimé sous la forme de Fresnel-Kirchhoff, on obtient une équation intégrale de la fonction cherchée de la distribution du champ sur le miroir.

En effet, le champ u_1 régnant dans la zone de Fresnel de l'un des miroirs et déterminé par les radiations réfléchies sur l'autre miroir d'aire A, est donné par l'intégrale étendue à la surface A :

$$u_1 = \frac{jk}{4\pi} \int_A u_2 \frac{e^{-jkr}}{r} (1 + \cos\theta) ds, \tag{7.22}$$

où u_2 est le champ sur l'ouverture du miroir « rayonnant », k la constante de propagation, r la distance entre un point du miroir « rayonnant » et le point d'observation et θ l'angle que fait le vecteur $\mathbf{r}$ avec la normale au plan du miroir. Après q trajets, le champ régnant près d'un miroir est lié au champ réfléchi par l'autre miroir par la formule (7.22) où on doit remplacer u_1 par u_{q+1} et u_2 par u_q.

Le calcul sur ordinateur justifie l'hypothèse selon laquelle la distribution du champ près des miroirs ne subit, après un grand nombre de trajets, que des variations minimes à chaque réflexion ultérieure et devient stationnaire. C'est alors que les champs près des miroirs deviennent égaux, à une constante complexe près. On peut donc écrire

$$u_q = (1/\gamma)^q v, \tag{7.23}$$

où v est une fonction de distribution qui ne change pas d'une réflexion à une autre et γ une constante complexe caractérisant les conditions de propagation du rayonnement entre les réflexions. En substituant (7.23) dans

(7.22), on obtient l'équation intégrale

$$v = \gamma \int_A vK\, ds, \tag{7.24}$$

dont le noyau est de la forme

$$K = \frac{jk}{4\pi}(1 + \cos\theta)e^{-jkr}. \tag{7.25}$$

Les fonctions propres de cette équation intégrale sont les modes (vibrations normales, vibrations propres, types de vibrations normaux, modes vibratoires, etc.) du résonateur considéré ; $\ln\gamma$ caractérise l'amortissement et le déphasage de l'onde à chaque trajet et représente donc la constante de propagation du mode considéré.

Les études de Fox et Lee des résonateurs ouverts du type de l'interféromètre de Fabry-Pérot présentant des configurations géométriques différentes (miroirs plans rectangulaires, miroirs plans circulaires, miroirs sphériques et paraboliques à foyers confondus) ont permis de formuler les conclusions suivantes.

1. Les résonateurs ouverts du type des interféromètres de Fabry-Pérot, dotés de miroirs plans ou concaves, possèdent un ensemble discret de modes vibratoires.

2. Les ondes homogènes planes ne font pas partie des modes normaux des résonateurs ouverts.

3. Les ondes électromagnétiques qui correspondent aux modes propres du résonateur sont presque toutes transversales. C'est pour cela qu'on désigne les modes par le symbole TEM.

4. Les modes d'ordres supérieurs présentent des pertes par diffraction plus grandes que le mode fondamental.

5. Pour le mode fondamental, l'amplitude du champ décroît fortement aux bords des miroirs. De ce fait, ses pertes par diffraction sont beaucoup plus petites que celles qu'on pourrait prévoir dans l'hypothèse d'ondes homogènes planes, et sont donc généralement négligeables.

Les résultats obtenus par Fox et Lee ont démontré l'efficacité de la méthode d'analyse des champs et des ondes dans les résonateurs ouverts utilisant les équations intégrales qui établissent un lien entre les champs régnant sur les miroirs du résonateur sur la base du principe de Huygens exprimé sous la forme intégrale de Fresnel-Kirchhoff.

Huitième leçon. LES FAISCEAUX GAUSSIENS

Résonateurs à foyers confondus. Distribution du champ. Faisceaux gaussiens. Dimension de la tache. Divergence de l'émission. Rayon de courbure du front d'onde. Transformation des faisceaux gaussiens à l'aide d'une lentille. Accord des modes des résonateurs. Focalisation des faisceaux gaussiens. Dimensions longitudinale et transversale de la région focale.

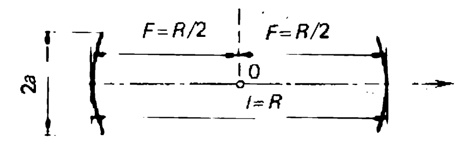


Fig. 8.1. Schéma du résonateur confocal. Le plan xy est perpendiculaire à l'axe z. Le point confocal est placé à l'origine des coordonnées O.

Les études de Fox et Lee ont montré que les structures ouvertes du type des interféromètres de Fabry-Pérot possédaient des modes vibratoires caractéristiques. On connaît aujourd'hui de nombreuses variétés de résonateurs ouverts se distinguant les uns des autres par la configuration et la disposition relative des miroirs. Le résonateur le plus simple et le plus commode est celui qui comporte deux réflecteurs sphériques de même courbure se faisant face par leurs côtés concaves et disposés l'un de l'autre à une distance égale au rayon de courbure, donc égale au rayon des sphères auxquelles appartiennent les réflecteurs. Comme la distance focale d'un miroir sphérique est égale à la moitié de son rayon de courbure, les foyers des réflecteurs sont confondus et c'est pour cela que ces résonateurs sont dits confocaux (fig. 8.1). L'avantage de ce résonateur résulte de ce qu'à la différence du résonateur de Fabry-Pérot à miroirs plan-parallèles, le réglage des miroirs ne nécessite pas qu'ils soient rigoureusement parallèles. La seule chose qui importe est que l'axe du résonateur intercepte chacun des miroirs assez loin de ses bords, sinon les pertes par diffraction seront trop importantes.

Examinons plus en détail le résonateur confocal.

Supposons d'abord que toutes ses dimensions sont grandes par rapport à la longueur d'onde. Dans ces conditions, les modes du résonateur, la distribution des champs et les pertes par diffraction peuvent être calculés sur la base du principe de Huygens-Fresnel en résolvant l'équation intégrale appropriée. Pour le cas de miroirs sphériques à ouverture rectangulaire ou circulaire, cette équation intégrale admet une séparation des variables par rapport aux coordonnées transversales et se laisse ramener ainsi à des équations intégrales unidimensionnelles. Si les réflecteurs du résonateur confocal ont une section rectangulaire dont le côté $2a$ est petit devant la distance l entre les miroirs, cette dernière étant égale au rayon de courbure R des miroirs, et si les nombres de Fresnel sont grands, les fonctions propres de l'équation intégrale du type Fox et Lee peuvent être remplacées en approximation par les produits des polynômes d'Hermite $H_n(x)$ par la fonction de Gauss $\exp(-x^2/w^2)$.

Dans un système de coordonnées cartésiennes dont l'origine coïncide avec le centre du résonateur, i.e. avec le foyer commun des deux miroirs,

et dont l'axe z coïncide avec l'axe du résonateur (fig. 8.1), la distribution transversale du champ est donnée par l'expression

$$S(x, y) = H_m(x/w)H_n(y/w)\exp[-(x^2 + y^2)/2w^2], \tag{8.1}$$

où w caractérise les dimensions de la région de la section droite au-delà de laquelle l'intensité du champ dans le résonateur, qui est proportionnelle à S^2, diminue de e fois. Cela signifie que w représente la largeur de la distribution de l'intensité. L'énergie de l'onde passant à travers le plan xy suivant l'axe z est concentrée pour l'essentiel dans une tache d'aire πw^2.

Les polynômes d'Hermite des premiers ordres sont de la forme

$$\begin{gathered} H_0(x) = 1, \quad H_1(x) = 2x, \quad H_2(x) = 4x^2 - 2, \\ H_3(x) = 8x^3 - 12x, \quad H_4(x) = 16x^4 - 48x^2 + 12. \end{gathered} \tag{8.2}$$

Aux fonctions propres de l'équation représentant la distribution transversale (8.1) correspondent les fréquences propres déterminées par la condition

$$4l/\lambda = 2q + (1 + m + n). \tag{8.3}$$

Etant donné que la composante longitudinale des fonctions propres est très petite, les solutions de l'équation initiale et donc les distributions transversales (8.1) décrivent des modes TEM_{mnq}. La figure 8.2 représente les graphiques des trois premières fonctions d'Hermite-Gauss de l'une des coordonnées transversales, qui ont été construits à l'aide de la formule (8.1) compte tenu de (8.2). Ces graphiques illustrent l'allure de la variation de la distribution transversale du champ à mesure que l'indice transversal n augmente.

Dans le résonateur confocal, les résonances ne se manifestent que pour les valeurs entières de $4l/\lambda$. Le spectre des modes du résonateur confocal est dégénéré en ce sens que l'accroissement de $m + n$ de deux unités et la diminution de q d'une unité fournissent la même valeur de la fréquence. Dans la notation du mode TEM_{mnq}, les indices m et n caractérisent les variations du champ suivant les directions x et y et prennent en général les valeurs 0, 1, 2, ..., tandis que l'indice q est égal au nombre de demi-ondes contenues dans la longueur du résonateur suivant l'axe z.

Le mode fondamental est le mode TEM_{00q} pour lequel la distribution transversale du champ est donnée par la fonction de Gauss simple $\exp[-(x^2 + y^2)/2w^2]$. La largeur de la distribution de l'intensité varie suivant l'axe z selon la loi

$$w^2 = w_0^2 + (z/kw_0)^2, \tag{8.4}$$

où $k = 2\pi/\lambda$ et w_0 est homogène au rayon du faisceau dans le plan focal de résonateur, i.e. pour $z = 0$; on l'appelle généralement rayon de la stric-

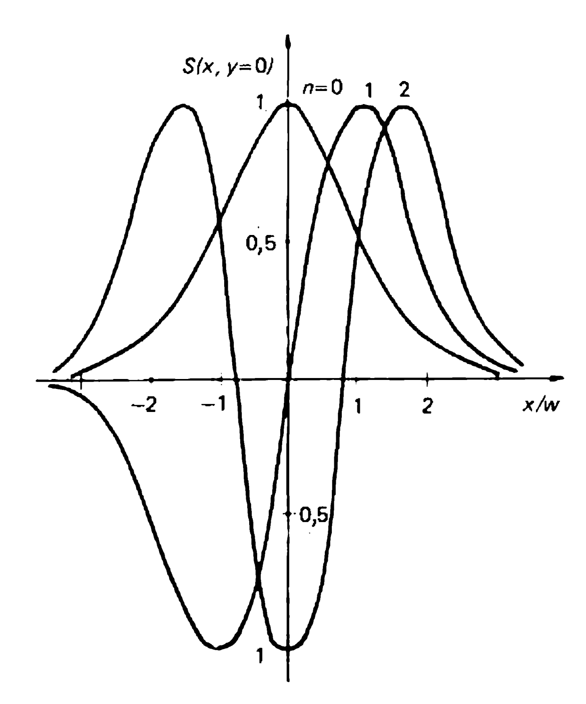


Fig. 8.2. Distribution du champ dans un résonateur confocal suivant l'une des coordonnées transversales pour les trois premiers modes ($n = 0, 1, 2$). Les valeurs maximales ont été normées à l'unité.

tion de la caustique. La quantité w_0 dépend de la longueur du résonateur et est égale à

$$w_0 = \sqrt{l\lambda/4\pi} = \sqrt{l/2k}\,. \tag{8.5}$$

A la surface du miroir, i.e. pour $z = l/2$, l'aire de la tache du mode fondamental est, selon (8.4) et (8.5), deux fois plus grande que l'aire de la section de la striction de la caustique.

Le fait que la dimension transversale $2w$ du faisceau gaussien ne dépend pas de la dimension transversale $2a$ des miroirs revêt une grande importance. Ce résultat est la conséquence de ce qu'on avait admis que le nombre de Fresnel $N_F = a^2/l\lambda$ était grand et que le rapport a^2/l^2 était petit, puisque c'est sur cette base qu'on a trouvé la solution (8.1). Puisque, compte tenu de (8.5), on peut écrire le nombre de Fresnel sous la forme $N_F = a^2/4\pi w_0^2$, exiger que ce nombre soit grand équivaut à exiger que l'aire $w^2 = 2w_0^2$ de la tache du mode sur le miroir soit petite par rapport à l'aire du miroir.

La solution (8.1) concerne le champ régnant à l'intérieur du résonateur. Mais lorsque l'un des miroirs est semi-transparent, comme c'est toujours

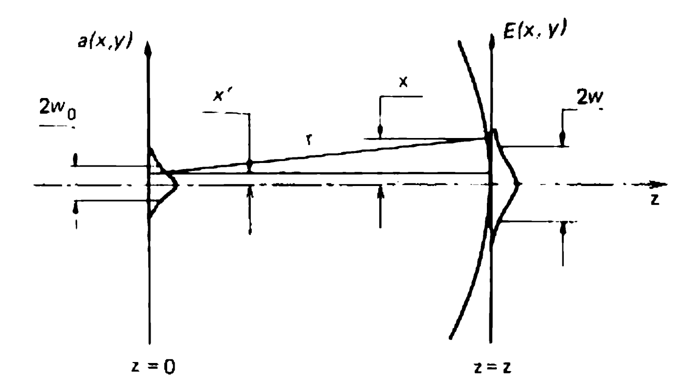


Fig. 8.3. Graphique utilisé dans le calcul du front d'onde créé à la distance z par une onde plane dont la distribution du champ dans le plan $z = 0$ est gaussienne.

le cas avec les résonateurs actifs des lasers, l'onde qui sort à l'extérieur est une onde progressive ayant une distribution transversale décrite par (8.1).

Le fait de sélectionner le mode fondamental d'un résonateur confocal actif revient à produire un faisceau gaussien de lumière monochromatique. Comme ces faisceaux possèdent des propriétés intéressantes et présentent un grand intérêt pratique, il convient de les examiner de plus près.

Supposons qu'un certain plan représente la surface du front d'onde d'une onde monochromatique pour la distribution gaussienne de l'amplitude sur ce front d'onde plan

$$a(x, y) = E_0 \exp\left[-(x^2 + y^2)/2w_0^2\right]. \tag{8.6}$$

En vertu du principe de Huygens-Fresnel, le front d'onde initial crée une onde dont le champ est donné par l'intégrale de Fresnel-Kirchhoff :

$$E(x, y) = \iint_{-\infty}^{\infty} \frac{a(x', y')}{r} \cos(\omega t - kr) dx'dy', \tag{8.7}$$

où $r^2 = z^2 + (x - x')^2 + (y - y')^2$, et x, y, z sont les coordonnées cartésiennes définies plus haut (fig. 8.3). Remplaçons $1/r$ par $1/z$ et posons $r \approx z + [(x - x')^2 + (y - y')^2]/2z$ dans l'argument $\cos(\omega t - kr)$, ce qui revient à remplacer, dans un triangle rectangle allongé, l'hypoténuse par le côté lorsqu'il s'agit de l'affaiblissement de l'amplitude du champ, et lorsqu'il s'agit du déphasage de l'onde on tiendra compte de ce que z et r ne sont pas parallèles. Un calcul direct donne

$$E(x, y) = \frac{2\pi}{k} E_0 w_0^2 \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2w^2}\right)\left[w_0^4 + \left(\frac{z}{k}\right)^2\right]^{-1/2} \times$$

$$\times \cos\left[\omega t - k\left(z + \frac{x^2 + y^2}{2R}\right) - \alpha\right], \quad (8.8)$$

où $R = z + (kw_0^2)^2/z$ et $\operatorname{tg}\alpha = kw_0^2/z$, w étant donné par (8.4). Compte tenu des considérations développées plus haut et dans la septième leçon, on ne peut être surpris de voir que la solution (8.8) coïncide complètement avec le mode fondamental TEM_{00q} du résonateur confocal.

La surface de phase constante d'un faisceau gaussien est donnée par l'équation

$$z + \frac{x^2 + y^2}{2R} = \text{const}, \quad (8.9)$$

à condition de négliger la faible variation de α en fonction de z. Lorsque $x^2/R^2 \ll 1$, $y^2/R^2 \ll 1$ (ce qui est toujours vérifié selon les hypothèses faites), cette équation détermine la sphère de rayon R et de centre au point confocal. Par conséquent, le mode fondamental TEM_{00q} du résonateur confocal est une onde sphérique issue du centre et dont l'intensité satisfait à la distribution de Gauss dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation. Le rayon de courbure du front d'onde sphérique varie alors au cours de la propagation selon la loi

$$R = z + (kw_0^2)^2/z \quad (8.10)$$

et à grande distance de l'origine des coordonnées ($z \gg kw_0^2 = l/2$) coïncide avec la distance entre le front d'onde et le résonateur : $R \approx z$.

Cela signifie que dans la région de rayonnement lointain, le front d'onde d'un faisceau gaussien s'identifie au front d'onde d'une onde sphérique issue d'un point situé sur l'axe du faisceau à l'endroit de sa striction focale. Pour $z = l/2$, le rayon $R = l$, ce qui signifie, comme de juste, que sur la surface du miroir le front d'onde coïncide avec la surface sphérique du miroir. La figure 8.4 représente l'enveloppe du faisceau gaussien dans le résonateur et les fronts d'onde.

Il est par ailleurs fort important que pour $z \to 0$, $R \to \infty$. Le plan de symétrie du résonateur ou, ce qui revient au même, son plan focal est la surface de phase constante. Cela signifie que dans la striction focale l'onde

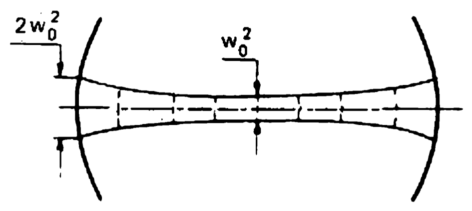


Fig. 8.4. Enveloppe de l'intensité d'un faisceau gaussien dans un résonateur confocal avec indication des fronts d'onde.

est plane, mais spatialement limitée par la dimension efficace w_0. C'est précisément cette dimension qui détermine la divergence du mode TEM_{00q}.

La distribution de l'amplitude (8.8) sur le front d'onde d'un faisceau gaussien possède une symétrie axiale et une largeur w (8.4). A grande distance du résonateur ($z \gg kw_0^2 = l/2$), la largeur $w = z/kw_0$ et il lui correspond une divergence angulaire

$$\theta = w/z = 1/kw_0. \qquad (8.11a)$$

En conséquence, la majeure partie de l'énergie d'un faisceau gaussien est contenue dans les limites de l'angle solide

$$\Omega = \pi\theta^2 = \lambda/l. \qquad (8.11b)$$

Ainsi, la divergence de l'émission laser sur le mode fondamental dépend non pas des dimensions transversales du résonateur du laser, mais de ses dimensions longitudinales. Cela tient à ce que le plus petit orifice efficace, susceptible de provoquer la diffraction d'un faisceau gaussien se propageant librement, correspond à la section focale de sa caustique. La divergence géométrique est déterminée par le rapport de la longeur d'onde λ à la largeur w_0 de la distribution d'intensité dans la région de la striction. Par ailleurs, la résolution des équations intégrales du champ autocongruent du type Fox et Lee conduit à l'expression (8.5) pour w_0.

En fait, la formule (8.8) décrit l'onde diffractée résultant de l'autodiffraction du faisceau gaussien. La figure de diffraction décrite par la formule (8.8) est caractérisée par une décroissance monotone de l'intensité à mesure qu'on s'éloigne de la direction axiale (autrement dit cette figure ne présente aucune variation de brillance), ainsi que par une chute rapide de l'intensité de l'onde sur les flancs de la distribution. La diffraction des faisceaux gaussiens par une ouverture présentera ces caractéristiques générales chaque fois que les dimensions de l'ouverture seront notablement plus grandes que la largeur w de la distribution d'intensité.

Il est opportun de noter que dans la gamme des ondes radio, à ce caractère monotone de la figure de diffraction du faisceau gaussien correspond l'existence de diagrammes de directivité sans lobes latéraux des antennes de réception et d'émission des stations radar ou des antennes de réception des radiotélescopes UHF ; cela résulte de la diminution de l'intensité du rayonnement incident à la périphérie de l'ouverture d'antenne déterminant sa directivité.

L'absence d'oscillations d'intensité (absence de lobes latéraux) est liée à une diminution progressive de l'amplitude du champ en fonction de la distance jusqu'à l'axe du faisceau et non pas à l'existence d'une loi de décroissance concrète (dans notre cas, à une loi gaussienne).

L'expression (8.8) du champ d'un faisceau gaussien a été obtenue pour une certaine position du plan d'origine $z = 0$ où le front d'onde est plan

et la largeur de la distribution est minimale. Mais on peut refaire les calculs en prenant pour base la distribution gaussienne dans un autre plan et on retrouvera le même résultat. Il s'ensuit que si quelque part dans l'espace un faisceau d'ondes présente un front d'onde sphérique et une distribution transversale gaussienne de l'amplitude, on peut affirmer que ces propriétés subsistent dans tout l'espace. A mesure de la propagation de l'onde, ne varient que le rayon de courbure du front d'onde (8.10) et la largeur de la distribution (8.4) de l'amplitude. Une onde qui possède ces propriétés est appelée onde ou faisceau gaussien. La largeur w du faisceau et le rayon de courbure R du front de phase caractérisent complètement un faisceau gaussien en un point donné de son axe de propagation. Une variation du signe de R indique que la courbure du front de phase s'est inversée, i.e. de divergent, le faisceau est devenu convergent, ou inversement.

Une lentille mince idéale transforme un faisceau gaussien divergent en un faisceau convergent qui reste gaussien. Si les dimensions transversales de la lentille sont suffisamment grandes pour ne pas diaphragmer sensiblement le faisceau, son action se réduit à faire varier la courbure du front d'onde. Selon l'optique géométrique, une lentille mince idéale dévie tous les rayons lumineux qui tombent sur la lentille parallèlement à son axe optique de façon à les rassembler en un point se trouvant à une distance de la lentille appelée distance focale F. Il s'ensuit qu'après avoir traversé une lentille, une onde plane se transforme en une onde sphérique avec un rayon de courbure du front d'onde égal à $-F$. On en conclut qu'une lentille mince fait varier la courbure du front de l'onde transversant la lentille d'une quantité égale à $-1/F$. Le rayon de courbure du front d'onde d'un faisceau gaussien émergeant de la lentille est donné par la relation

$$1/r = 1/R - 1/F, \tag{8.12}$$

où R désigne le rayon de courbure du front d'onde juste avant de pénétrer dans la lentille. Pour une lentille à foyer court ($F < R$) $r < 0$, ce qui signifie qu'après traversée de la lentille, la courbure du front d'onde a changé de signe et on obtient ainsi un faisceau gaussien convergent.

Vu l'importance que présente pour l'électronique quantique la focalisation des faisceaux gaussiens, on examinera cette question de plus près.

Supposons qu'un faisceau gaussien divergent allant de gauche à droite tombe sur une lentille idéale de distance focale F, la région de resserrement (de rayon w_0) du faisceau se trouvant à la distance z de la lentille. Soit R le rayon de courbure du front d'onde juste devant la lentille. La courbure du front d'onde juste derrière la lentille est donnée par la formule (8.12). Soit D la largeur du faisceau à l'endroit où se trouve la lentille. Il est évident que la largeur du faisceau sur la lentille est la même à droite et à gauche (fig. 8.5).

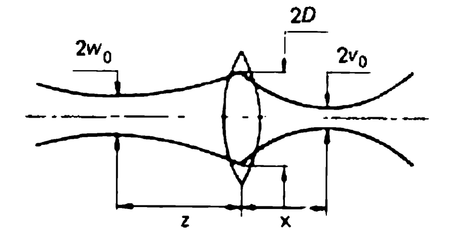


Fig. 8.5. Graphique utilisé dans le calcul du rayon de striction d'un faisceau gaussien focalisé et de la distance entre la lentille et l'emplacement de la striction.

Notons x la distance cherchée entre la lentille et le point de l'axe optique de la lentille où la section droite du faisceau convergent est minimale et égale à la quantité cherchée v_0^2. Du fait que le faisceau reste gaussien après traversée de la lentille, il est évident que les quantités x, r, v_0, D doivent vérifier les relations de la forme (8.4) et (8.10). On trouve alors pour x et v_0^2 le système d'équations

$$x + k^2 v_0^4/x = r, \quad v_0^2 + x^2/k^2 v_0^2 = D^2, \tag{8.13}$$

dont la résolution ne pose aucun problème. Après quelques réarrangements on obtient

$$x = \frac{k^2 D^4}{r^2 + k^2 D^4}\, r, \tag{8.14}$$

$$v_0^2 = \frac{D^2}{r^2 + k^2 D^4}\, r^2. \tag{8.15}$$

La valeur de r est donnée par la formule (8.12) et $D^2 = w_0^2 + z^2/k^2 w_0^2$ conformément à (8.4). Les relations obtenues sont d'une généralité suffisante pour pouvoir étudier la transformation d'un faisceau gaussien en un autre faisceau gaussien. Le problème qu'on a à résoudre le plus souvent consiste à adapter l'un à l'autre les champs régnant dans deux résonateurs différents.

Supposons que le résonateur passif soit utilisé en qualité d'interféromètre de Fabry-Pérot pour étudier, par exemple, le spectre d'émission d'un laser, i.e. le spectre d'émission sortant du résonateur actif. On sait que la distribution du champ du mode fondamental d'un résonateur confocal est une onde gaussienne dont la caustique présente une striction ayant un rayon qui dépend de la longueur l du résonateur (voir formule (8.5)) et dont le front d'onde sur le miroir a un rayon de courbure dépendant du rayon de courbure du miroir. Aussi, dans le cas général, les modes de deux résonateurs ne coïncident-ils pas. Lorsqu'un faisceau lumineux correspondant au mode du premier résonateur est envoyé dans un deuxième résonateur sans qu'on ait réalisé au préalable l'adaptation de leurs modes, l'inadaptation des modes entraîne leur transformation. Le mode fondamental de l'émission laser entre en interaction avec les modes supérieurs du résonateur pas-

sif en y excitant des vibrations. Si le transfert de l'énergie du mode fondamental du résonateur actif est notable, on risque de commettre de grosses erreurs dans l'étude de la composition spectrale de l'émission laser. C'est pour cela que la possibilité de modifier les paramètres d'un faisceau gaussien à l'aide d'une lentille est tellement importante. Les formules (8.14) et (8.15) permettent de calculer la distance focale et la position de la lentille, connaissant la position et les dimensions du resserrement du faisceau dans les deux résonateurs.

Revenons à notre problème de focalisation de l'émission laser et examinons les solutions de (8.14) et (8.15) à grande distance de la striction de la caustique du faisceau gaussien primaire, i.e. pour $z \gg kw_0^2$. Appliqué à l'émission laser, cela correspond à une grande distance du résonateur du laser: $z \gg l/2$ (cf. formule (8.5)). Posons aussi $F \ll z$. On a alors $D^2 \approx z^2/k^2w_0^2$, $r \approx -F$, et on tire des formules (8.14) et (8.15)

$$v_0 = w_0F/z, \tag{8.16}$$

$$x = -F. \tag{8.17}$$

Ces résultats montrent qu'à grande distance de la striction de la caustique une lentille de distance focale relativement petite arrive à concentrer dans sa région focale l'émission primaire d'un faisceau gaussien et à augmenter son intensité de z^2/F^2 fois.

Tout formellement, il résulte de (8.16) que pour $z \to \infty$ on doit obtenir au foyer de la lentille une tache lumineuse de rayon infiniment petit ; mais la tache sur la lentille doit alors être infiniment grande ($D \to \infty$), ce qui est en contradiction avec l'hypothèse initiale que la lentille ne diaphragme pas le faisceau et n'altère donc pas son caractère gaussien. Si on délimite fortement l'ouverture d'un faisceau gaussien, on modifie radicalement le caractère de la diffraction et l'intégrale de Fresnel-Kirchhoff correspondante ne peut avoir la forme (8.8). D'autre part, même si le faisceau reste gaussien, les effets de diffraction limitent la valeur de D.

L'angle de divergence géométrique d'un faisceau gaussien est égal à $\lambda/2\pi w_0$. Cela implique qu'une onde gaussienne ne peut être focalisée en une tache de rayon inférieur à $\lambda/2\pi$. On déduit de (8.16) que $F = zv_0/w_0$, mais v_0 est toujours plus grand que $\lambda/2\pi$, $v_0 \geqslant \lambda/2\pi$. Comme $D = z\lambda/2\pi w_0$, il est évident que les formules (8.14) à (8.16) ne sont valables que si

$$F > D. \tag{8.18}$$

Par conséquent, on peut réaliser une importante concentration spatiale de l'énergie du mode fondamental d'une émission laser à l'aide d'une lentille mince disposée à grande distance du résonateur du laser ($z \gg kw_0^2 = l/2$). La lentille doit avoir une distance focale inférieure à z mais supérieure à

la dimension D de la tache sur la lentille. Dans ce cas, les conditions de focalisation s'écrivent

$$z \gg l/2, \quad z \gg F > D \tag{8.19}$$

et sont donc facilement réalisables.

On peut calculer la dimension longitudinale de la région focale où l'énergie de l'émission se trouve le plus fortement concentrée en appliquant la formule (8.4) à l'émission focalisée. L'intensité de l'émission diminue de deux fois lorsqu'on s'éloigne du point $x = -F$, où la concentration est maximale et où la largeur de la distribution est égale à v_0, d'une distance égale à

$$\Delta x = kv_0^2 = \frac{2\pi}{\lambda}\, v_0^2. \tag{8.20}$$

Lorsqu'on focalise les radiations de 1 μm de longueur d'onde en une tache de 10 μm de rayon, la densité du flux d'énergie est presque uniforme dans une région presque cylindrique de 1200 μm de long.

On notera qu'au foyer le front d'onde de l'émission est plan et presque plan dans toute la région de l'étranglement focal.

On a déduit les formules (8.16) et (8.17) pour z grand de la solution générale de (8.14) et (8.15). Or, pour ce cas limite, ces formules peuvent être établies directement. Lorsque z est grand, l'onde soumise à la focalisation est presque plane, ce qui implique qu'elle se focalise en un point qui est le foyer par définition. Pour z et F grands, le rayon de la tache sur la lentille, pour une propagation allant de gauche à droite, est donné par la relation $D = z/kw_0$ et pour une propagation allant de droite à gauche, par la relation $D = F/kv_0$. Il s'ensuit que $v_0 = w_0F/z$.

Considérons maintenant le cas limite opposé. Faisons coïncider la striction de la caustique de l'émission à focaliser avec le foyer avant de la lentille, i.e. à une distance $z = F$ du plan de la lentille. Il s'agit de déterminer l'endroit où viendra se concentrer le faisceau gaussien, ainsi que le rayon de son resserrement. En substituant $z = F$ dans les formules (8.4), (8.10) et (8.12), on obtient les expressions suivantes pour le rayon de la tache sur la lentille et le rayon de courbure du front d'onde à l'émergence de la lentille:

$$D^2 = \frac{k^2w_0^4 + F^2}{k^2w_0^2}, \quad r = -\frac{k^2w_0^4 + F^2}{k^2w_0^4}\, F. \tag{8.21}$$

En substituant (8.21) dans (8.15), on trouve

$$v_0^2 = F^2/k^2w_0^2 = D^2 - w_0^2, \tag{8.22}$$

$$x = -F. \tag{8.23}$$

Pour $z = F$ la lentille se trouve là où se trouverait le miroir sphérique du résonateur confocal équivalent, qui forme le faisceau gaussien à focaliser.

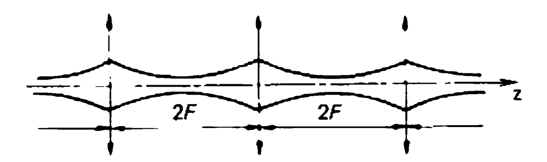


Fig. 8.6. Guide confocal à lentilles (les lentilles sont schématisées par des flèches verticales).

Autrement dit, lorsque $z = F$, on a simultanément $z = l/2$. Lorsque $z = l/2$, i.e. à la surface du miroir, l'aire de la tache du mode fondamental est deux fois plus grande que l'aire de la section droite de la striction de la caustique du résonateur (cf. (8.4) et (8.5)). Par conséquent, $D^2 = 2w_0^2$ et

$$v_0^2 = w_0^2. \tag{8.24}$$

Ainsi une lentille mince idéale de distance focale F transforme un faisceau gaussien divergent en un faisceau convergent en tout point similaire, à condition que l'étranglement focal du faisceau primaire soit placé au foyer de la lentille. Cela signifie que la lentille permet de conserver la section minimale du faisceau gaussien en la transférant d'un foyer à l'autre, à condition que ce minimum coïncide dès le début avec le foyer de la lentille.

Il est clair qu'en disposant une deuxième lentille de distance focale F à une distance $2F$ de la première, cette deuxième lentille transformera le faisceau gaussien secondaire (par rapport à la première lentille) exactement de la même façon. En disposant avec un intervalle $2F$ une succession périodique de lentilles identiques, on obtient ainsi un guide confocal à lentilles qui permet de transmettre à une distance aussi grande qu'on le veut un faisceau lumineux sans divergence en moyenne (fig. 8.6). La trajectoire de l'onde dans un guide confocal à lentilles se présente comme une succession périodique de faisceaux gaussiens identiques convergents et divergents. La distribution du champ entre les lentilles est en tout point similaire à celle existant entre les miroirs du résonateur confocal. Il est donc naturel que les modes normaux du guide confocal à lentilles coïncident avec les modes du résonateur confocal.

L'analogie qui existe entre les résonateurs et les guides à lentilles est assez complète pour pouvoir être mise à profit pour l'étude des résonateurs de différents types.

Neuvième leçon. STABILITÉ DU RÉSONATEUR

Stabilité des guides à lentilles. Guide formé de lentilles identiques. Guide formé de lentilles ayant alternativement deux distances focales différentes. Conditions et diagramme de stabilité. Equivalence du guide à lentilles et du résonateur ouvert. Types de résonateurs stables. Sélection de modes transversaux à l'aide d'un diaphragme. Instabilité des résonateurs.

L'analogie qui existe entre les guides à lentilles et les résonateurs ouverts sera mise à profit pour l'étude de la stabilité des résonateurs. On dit qu'un résonateur est stable lorsque, à la suite de réflexions successives sur les deux miroirs du résonateur, il s'y produit une focalisation périodique du rayonnement qui s'y propage qui est telle que dans l'approximation de l'optique géométrique aucune énergie ne s'échappe du résonateur. Dans un résonateur instable, une fraction notable de l'énergie accumulée s'échappe du résonateur à chaque trajet entre les miroirs. On peut donc dire qu'un résonateur stable admet une distribution stationnaire du champ qui se reproduit sans altération quel que soit le nombre de trajets qu'effectue le rayonnement entre les miroirs et qui présente des pertes par diffraction tellement faibles que la durée de vie de cette distribution stable vérifie la condition $\omega\tau_{\text{diffr}} \gg 1$ (cf. (7.17)).

A un résonateur stable correspond un guide à lentilles stable. On dit qu'un guide de lumière est stable s'il permet la propagation à toute distance d'un faisceau lumineux sans que celui-ci s'en échappe. Procédons à l'analyse de la stabilité d'un guide de lumière composé de lentilles de même distance focale F disposées coaxialement à une distance l les unes à la suite des autres. La trajectoire du rayon lumineux dans le guide à lentilles sera traitée dans l'approximation des rayons paraxiaux (ou centraux). Dans cette approximation, on peut utiliser la formule des lentilles minces

$$1/a_1 + 1/a_2 = 1/F, \tag{9.1}$$

où a_1 est la distance du point lumineux placé en un point de l'axe optique principal jusqu'au centre optique de la lentille et a_2 la distance du centre optique de la lentille jusqu'à l'image du point lumineux. On peut mettre cette formule générale sous une forme convenant mieux à nos besoins. Soit un rayon lumineux traversant le plan de la lentille à une distance r de son axe optique principal. A son point d'impact sur la lentille, ce rayon fait un angle α_1 avec la normale au plan de la lentille et en émerge sous un angle α_2. Dans l'approximation des rayons paraxiaux, i.e. pour $r \ll a_1, a_2$, une formule équivalente à (9.1) s'écrit

$$\alpha_2 - \alpha_1 = -r/F, \tag{9.2}$$

où les angles positifs sont comptés dans le sens antihoraire (fig. 9.1).

Considérons trois lentilles voisines du guide de lumière $n - 1$, n et $n + 1$. La distance de notre rayon lumineux jusqu'au point n de l'axe optique de la lentille numéro n est égale à r_n. Le rayon qui émerge de la lentille numéro n fait un angle α_n avec l'axe optique du guide. Appliquée aux lentilles voisines, la formule (9.2) s'écrit (fig. 9.2) :

$$\alpha_n - \alpha_{n-1} = r_n/F. \tag{9.3}$$

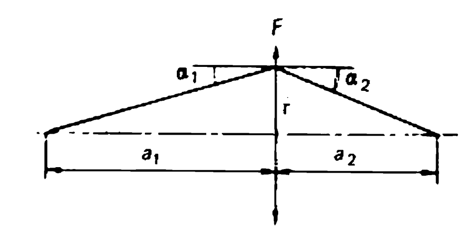


Fig. 9.1. Construction utilisée pour établir la formule de la lentille (9.2).

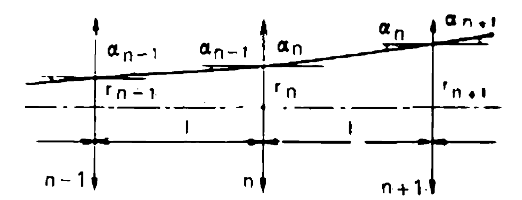


Fig. 9.2. Construction utilisée pour établir la condition de stabilité des guides à lentilles.

A leur tour, les distances entre le rayon et l'axe dans les lentilles voisines sont liées entre elles par les relations

$$r_{n+1} = r_n + \alpha_n l, \quad r_n = r_{n-1} + \alpha_{n-1} l, \tag{9.4}$$

qui ne sont valables que pour les rayons paraxiaux. En retranchant la deuxième équation de la première et en tenant compte de (9.3), on obtient la relation de récurrence

$$r_{n+1} + (l/F - 2)r_n + r_{n-1} = 0, \tag{9.5}$$

permettant de déterminer la position du rayon sur n'importe quelle lentille du guide, connaissant ses positions sur les deux premières lentilles.

On a obtenu ainsi, dans l'approximation de l'optique géométrique, une relation de récurrence permettant de suivre la marche de n'importe quel rayon d'un faisceau paraxial se propageant dans un guide et d'étudier sa stabilité. L'analogie avec l'étude de Fox et Lee des trajets successifs du rayonnement entre les miroirs du résonateur est évidente.

Dans le cas considéré ici, il n'est pas nécessaire d'avoir recours aux calculs sur ordinateur puisque l'expression (9.5) admet une solution analytique. Cherchons cette solution sous la forme

$$r_n = Ae^{jn\theta}, \tag{9.6}$$

où A est une constante. En substituant (9.6) dans (9.5), en utilisant la formule d'Euler $\exp(j\theta) = \cos\theta + j\sin\theta$ et en imposant que (9.5) soit vérifiée aussi bien pour sa partie réelle que pour sa partie imaginaire, on trouve que (9.6) satisfait à (9.5) à condition que

$$\cos\theta = 1 - l/2F. \tag{9.7}$$

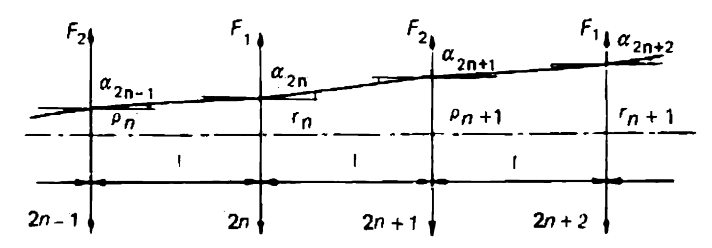


Fig. 9.3. Construction utilisée pour établir les conditions de stabilité d'un guide à lentilles alternées de distances focales F_1 et F_2

L'expression (9.6) est une solution particulière de (9.5). Analysons cette solution sans chercher la solution générale. Le guide de lumière est stable lorsque, pour n croissant, r_n oscille dans les limites $\pm A$, A étant homogène à la position du rayon à l'entrée du guide.

La condition nécessaire et suffisante de l'existence d'oscillations non croissantes de r_n est le caractère réel de θ. Lorsque θ est réel, la fonction $\cos\theta$ a pour limites ± 1, et par suite le domaine admissible de variation du rapport l/F est déterminé par

$$-1 \leqslant 1 - l/2F \leqslant 1. \tag{9.8}$$

Pour les valeurs de l/F se trouvant en dehors de ce domaine, le cosinus est remplacé par la fonction hyperbolique, θ par une quantité complexe, et l'amplitude de la déviation r_n du rayon par rapport à l'axe du guide ne cesse de croître. En conséquence, le rayon s'échappe du guide et celui-ci devient instable. Les inégalités (9.8) représentent donc la condition de stabilité du guide considéré.

Considérons maintenant un cas plus général. Supposons que les distances focales des lentilles voisines soient différentes et égales à F_1 et F_2. Dans le guide, les distances entre toutes les lentilles sont égales à l. Les valeurs de F_1 et F_2 sont maintenues constantes et alternent sur toute la longueur du guide, de sorte que toutes les lentilles paires ont une distance focale F_1 et toutes les lentilles impaires ont une distance focale F_2.

On peut obtenir une relation de récurrence analogue à (9.5) en appliquant successivement la formule (9.2) au schéma représenté sur la figure 9.3. Les angles d'inclinaison et les positions du rayon sur les lentilles du guide à distances focales alternées sont liés par les relations

$$\alpha_{2n} - \alpha_{2n-1} = -r_n/F_1, \tag{9.9}$$

$$\alpha_{2n+1} - \alpha_{2n} = -\varrho_{n+1}/F_2. \tag{9.10}$$

Dans l'approximation des rayons paraxiaux, les positions du rayon sur les lentilles voisines sont liées entre elles par les relations

$$r_n = \varrho_n + \alpha_{2n-1} l, \tag{9.11}$$

$$\varrho_{n+1} = r_n + \alpha_{2n} l. \tag{9.12}$$

En retranchant (9.12) de (9.11), on trouve, compte tenu de (9.9),

$$\varrho_{n+1} + \varrho_n = (2 - l/F_1) r_n. \tag{9.13}$$

De même on trouve

$$r_{n+1} + r_n = (2 - l/F_2) \varrho_{n+1}. \tag{9.14}$$

Si l'on remplace n par $n - 1$ dans (9.14)

$$r_n + r_{n-1} = (2 - l/F_2) \varrho_n, \tag{9.15}$$

si l'on additionne (9.15) et (9.14) et si l'on y introduit $\varrho_{n+1} + \varrho_n$ à l'aide de (9.13), on obtient une relation de récurrence ne contenant que r_n :

$$r_{n+1} + [2 - (2 - l/F_1)(2 - l/F_2)] r_n + r_{n-1} = 0. \tag{9.16}$$

Pour les positions du rayon sur les lentilles de numéros impairs ϱ_n on trouve à l'aide de transformations analogues une relation tout à fait analogue :

$$\varrho_{n+1} + [2 - (2 - l/F_1)(2 - l/F_2)] \varrho_n + \varrho_{n-1} = 0. \tag{9.17}$$

Par leurs formes, les relations de récurrence (9.16) et (9.17) sont analogues à la relation (9.5) ; par conséquent les solutions de (9.5) sous la forme (9.6) ou (9.7) leur sont applicables. Cela signifie que la stabilité d'un guide de lumière à alternance de lentilles de distances focales F_1 et F_2, disposées à une distance l les unes des autres, n'est assurée que si la condition suivante est remplie :

$$-1 \leqslant \cos \Phi = -\frac{1}{2} [2 - (2 - l/F_1)(2 - l/F_2)] \leqslant 1. \tag{9.18}$$

A l'aide de quelques transformations on met (9.18) sous une forme simple :

$$1 \geqslant (1 - l/2F_1)(1 - l/2F_2) \geqslant 0. \tag{9.19}$$

Si toutes les distances focales sont les mêmes $F_1 = F_2 = F$, les inégalités (9.19) et (9.8) sont équivalentes au même titre que sont équivalentes les inégalités $1 \geqslant x^2 \geqslant 0$ et $1 \geqslant x \geqslant -1$.

Introduisons les notations $g_1 = 1 - l/2F_1$ et $g_2 = 1 - l/2F_2$. Avec ces notations, les limites de variation des valeurs admissibles de $l/2F$ s'expriment simplement :

$$g_1 g_2 = 1, \tag{9.20}$$

$$g_1 g_2 = 0. \tag{9.21}$$

Ces équations permettent de représenter simplement en coordonnées g_1, g_2, sous forme graphique, les domaines de stabilité du guide.

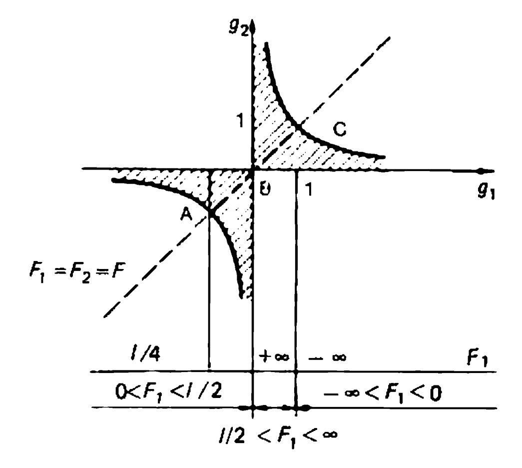


Fig. 9.4. Diagramme de stabilité. On a indiqué au bas de la figure les limites de variation de la distance focale F_1 correspondant à la variation du paramètre $g_1 = 1 - l/2F_1$ de $-\infty$ à $+\infty$.

Sur la figure 9.4 les hyperboles $g_1g_2 = 1$ et les axes de coordonnées vérifiant l'équation (9.21) délimitent le domaine de stabilité du guide de lumière : sur la figure 9.4 ce domaine de stabilité est hachuré. Les valeurs admissibles de g_1 et g_2 doivent se trouver dans le domaine hachuré et sur sa frontière. Indiquons quelques points singuliers de ce diagramme présentant de l'intérêt pour nos besoins. L'origine des coordonnées $B(g_1 = 0, g_2 = 0)$ correspond au système confocal $F_1 = F_2 = F = l/2$. On voit que le guide à lentilles confocal se situe à la frontière séparant les régions des trajectoires stables et instables. Le point $C(g_1 = 1, g_2 = 1)$ correspond au cas limite d'une distance focale infinie. Le point $A(g_1 = -1, g_2 = -1)$ correspond à un guide à lentilles identiques ayant une distance focale $F = l/4$ qui est la plus courte pour ce type de guide.

Reprenons la question des résonateurs ouverts et analysons une nouvelle fois l'analogie entre le résonateur et le guide à lentilles.

Un résonateur pour laser typique se compose de deux miroirs faiblement concaves de haute réflectivité, disposés l'un en face de l'autre. Les miroirs peuvent avoir la même courbure ou des courbures différentes. Dans l'approximation des rayons paraxiaux, un miroir sphérique concave est équivalent à l'association d'un miroir plan et d'une lentille plan-convexe sphérique disposée immédiatement devant le miroir. Les résonateurs illustrés par la figure 9.5, *a* et *b* sont optiquement équivalents. Dans ces conditions, l'une des composantes progressives de l'onde stationnaire du champ du mode résonnant traverse, à la suite d'une réflexion sur le miroir, deux fois de suite la lentille $2F_1$ équivalente. Au point de vue de la focalisation, chacune des ondes progressives se propage dans le résonateur exactement comme le fait l'onde progressive dans le guide représenté sur la figure 9.5, *c*. Les lentilles plan-convexes représentées sur la figure 9.5, *b* ont les distan-

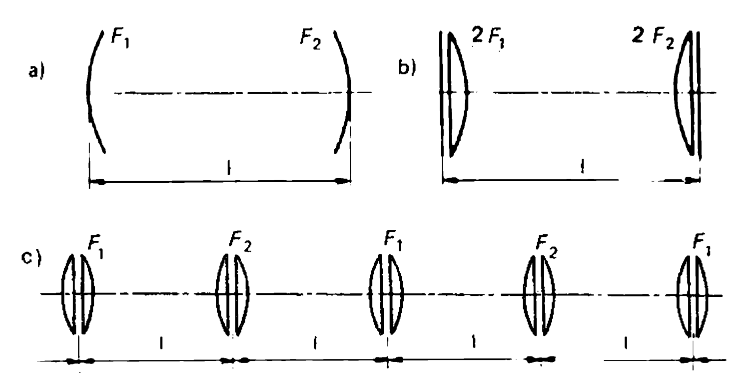


Fig. 9.5. Equivalence du résonateur et du guide de lumière.

ces focales $2F_1$ et $2F_2$. Mais l'onde les traverse deux fois de suite en inversant son sens de propagation sur la face plane de la lentille. Il s'ensuit que chacune de ces lentilles se comporte comme deux lentilles identiques disposées à petite distance l'une de l'autre et dont les pouvoirs optiques s'additionnent. C'est pour cela que dans un guide les lentilles F_1 et F_2 sont équivalentes aux lentilles $2F_1$ et $2F_2$. On pourrait admettre alors que le résonateur se transforme en un guide équivalent à condition de ne pas tenir compte de l'inversion du sens de propagation de l'onde à chaque réflexion et de supposer que l'onde se propage sans subir de réflexion et qu'après la première lentille on trouve une deuxième lentille identique à la première. Finalement, on arrive à la conclusion qu'un guide à lentilles peut être considéré comme un résonateur ouvert qui serait déployé le long de son axe. Cette conclusion se fonde sur les résultats d'une analyse effectuée dans l'approximation de l'optique géométrique.

Il a été indiqué dans la huitième leçon que le guide confocal à lentilles possédait des modes de propagation normaux qui coïncidaient avec les modes vibratoires normaux du résonateur confocal. Dans le cas général, pour déterminer les modes normaux d'un guide à lentilles, on met à profit le fait que la distribution du champ sur chaque lentille (ou sur chaque lentille paire ou impaire) se reproduit à un facteur de phase près. D'autre part (en se fondant sur le principe de Huygens), on exprime le champ dans le plan-support d'une lentille par l'intégrale de diffraction de Fresnel-Kirchhoff du champ dans le plan-support de la lentille précédente. La condition de reproduction du champ, à un facteur de phase près, ramène le problème au calcul des valeurs propres ; on écrit alors des équations intégrales en tous points semblables à l'équation de Fox et Lee du résonateur ouvert. La résolution de ces équations fournit les distributions des champs sous forme de produits des polynômes d'Hermite par la fonction de Gauss ; le résultat coïncide avec celui que l'on trouve pour les résonateurs.

On voit que l'approche d'optique géométrique et l'approche ondulatoire démontrent que les guides à lentilles sont équivalents aux résonateurs ouverts. Il s'ensuit que les conditions de stabilité (9.19) et le diagramme de stabilité représenté sur la figure 9.4 s'appliquent aux résonateurs ouverts de laser.

Examinons plus attentivement le diagramme de stabilité des résonateurs.

Le point $B(g_1 = 0,\ g_2 = 0)$ correspond au résonateur confocal dont il a été déjà question. Ce type de résonateur se trouve à la frontière des régions de stabilité et d'instabilité et sa stabilité est plutôt formelle. La moindre dissymétrie des miroirs suffit pour que le résonateur confocal devienne instable. C'est pour cela que le résonateur confocal, dont l'analyse est la plus facile et qui sert souvent de modèle d'étude, n'est que rarement utilisé en pratique.

La droite ABC correspond à différents résonateurs à miroirs de même rayon de courbure R (résonateurs symétriques). Au point $A(g_1 = -1,\ g_2 = -1)$ correspond le résonateur dit concentrique, pour lequel les centres de courbure des miroirs sont confondus: $l = 4F = 2R$. Le point B correspond au résonateur confocal. Au point $C(g_1 = 1,\ g_2 = 1)$ correspond le résonateur à miroirs plans ($F = \infty$). Tous ces résonateurs se situent à la frontière de séparation des régions stable et instable. Aussi, chaque fois qu'il est souhaitable d'utiliser un résonateur symétrique, on utilise le résonateur quasi confocal, dont les miroirs se trouvent l'un de l'autre à une distance peu différente de celle d'un résonateur confocal :

$$l/2F = 1 \pm \alpha, \quad \alpha \ll 1. \tag{9.22}$$

Même une petite valeur de α suffit pour rendre le résonateur stable sans que la distribution du champ y soit sensiblement différente de celle du résonateur confocal.

Néanmoins c'est le résonateur semi-confocal (fig. 9.6) qui est le plus utilisé ; il se compose d'un miroir plan ($F_1 = \infty$) et d'un miroir sphérique dont le rayon de courbure est choisi de façon que son foyer se trouve sur le miroir plan ($F_2 = l$). Ce résonateur est stable, $g_1 g_2 = 1/2$. Le miroir plan

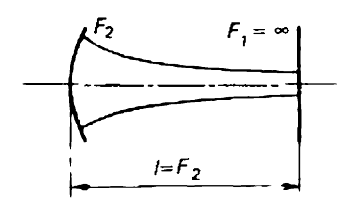


Fig. 9.6. Résonateur semi-confocal.

placé dans le plan focal divise le résonateur confocal en deux parties égales ; le champ réel de la partie supprimée est remplacé par le champ image dans la partie restante. C'est pour cela que dans ce type de résonateur, il ne s'établit que la moitié de la distribution du champ propre au résonateur confocal. La popularité du résonateur semi-confocal tient à la facilité de réalisation du miroir de sortie de l'émission laser puisqu'on utilise un miroir semi-transparent plan et non pas sphérique.

La question de la structure du résonateur de laser est étroitement liée à la question des modes de l'émission laser. La divergence de l'émission, qui a été envisagée dans la huitième leçon, ne concernait que la divergence que subit un faisceau gaussien du mode fondamental du fait de la diffraction. On conçoit que l'existence de modes transversaux, dont les directions d'émission au maximum d'intensité sont différentes les unes des autres et différentes de la direction de l'axe du résonateur, qui fixe la direction d'émission du mode fondamental (voir (8.1) et (8.2)), affecte grandement la directivité de l'émission. La question de la sélection des modes transversaux est donc fort importante.

Dans la plupart des cas, on cherche à sélectionner le mode fondamental, car il possède les plus petites pertes de diffraction, ces dernières augmentant fortement à mesure que l'indice transversal des modes augmente. Or, dans les résonateurs stables, les pertes de diffraction sont tellement faibles qu'elles ne peuvent servir de base pour séparer les modes. C'est pour cela que la sélection ne peut se fonder que sur les différences dans la distribution du champ des modes ayant des indices transversaux différents. Comme le mode fondamental présente une distribution gaussienne symétrique par rapport à l'axe du résonateur et dont la largeur dans le plan transversal est petite, le procédé de sélection le plus simple et le plus efficace consiste à diaphragmer le faisceau dans le résonateur. Si l'ouverture du diaphragme est petite, le nombre de Fresnel $N_F = a^2/l\lambda$ du résonateur sera déterminé par ce diaphragme. A mesure que le nombre de Fresnel diminue, la différence entre les pertes de diffraction du mode fondamental et des modes d'ordres supérieurs ne fait que croître, et c'est ce qui permet de les séparer.

Connaissant la dépendance théorique des pertes par diffraction du mode fondamental et du mode qui lui fait suite d'après les indices transversaux en fonction du nombre de Fresnel, on arrive à déterminer le rayon du diaphragme le plus approprié. L'utilisation d'un diaphragme donne toutefois lieu à des pertes dans le mode fondamental. Une estimation simple de la dimension transversale du diaphragme se fonde sur le fait que cette dimension doit être approximativement égale à l'extension transversale de la distribution du champ du mode qui fait suite au mode fondamental ; le diaphragme doit être disposé dans le résonateur là où la différence d'étendue des modes est la plus grande. Néanmoins le choix de l'ouverture du diaphragme et de sa position se fait par voie expérimentale.

L'inconvénient majeur du procédé considéré de sélection du mode fondamental dans un résonateur stable résulte des faibles dimensions transversales de ce mode. Ce fait facilite sa sélection mais réduit la puissance de sortie, car dans ce cas une partie seulement du volume du milieu actif est embrassée par le champ électromagnétique. Pour augmenter la puissance de sortie, on doit augmenter le volume occupé par le mode. La solution la plus radicale consiste à utiliser des résonateurs instables. C'est précisément la mise en œuvre des résonateurs instables qui constitue le procédé le plus efficace de sélection des modes transversaux.

Les considérations qui ont été développées précédemment montrent qu'un résonateur est instable lorsqu'un rayon arbitraire, après un certain nombre de réflexions sur les miroirs, s'écarte infiniment loin de l'axe du résonateur. Autrement dit, sont instables les résonateurs optiques dont les paramètres se situent dans les régions d'instabilité du diagramme de la figure 9.4. Dans ces résonateurs, du fait de l'instabilité des rayons, les pertes par diffraction même du mode fondamental sont grandes et dépassent généralement toutes les autres pertes. D'autre part, l'importance des pertes par diffraction augmente lorsqu'on passe aux modes supérieurs. En conséquence, les pertes totales dépendent fortement des indices transversaux, ce qui entraîne la suppression des modes transversaux supérieurs et contribue donc à la sélection du mode fondamental.

Il est évident qu'on ne peut utiliser dans la pratique que les résonateurs instables dont le milieu actif est susceptible d'une grande amplification. S'il n'en est pas ainsi, les grandes pertes d'émission par passage, qui sont déterminées par l'instabilité du résonateur, ne peuvent être compensées et les conditions d'auto-excitation ne peuvent être satisfaites. Bien heureusement, la mise en œuvre des résonateurs instables est surtout requise pour les lasers à forte amplification et à grande énergie emmagasinée. Cela tient à ce que dans un résonateur instable, le volume occupé par le champ du mode fondamental est grand. La raison en est qu'à la différence d'un résonateur stable, dans les résonateurs instables, le champ n'y est pas périodiquement focalisé à chaque réflexion sur les miroirs et ne tend donc pas à se concentrer auprès de l'axe du résonateur. Les rayons lumineux qui cherchent à s'échapper du résonateur seront alors utilisés en qualité d'émission utile du laser envoyée dans le milieu extérieur.

Un important avantage du résonateur instable est la possibilité de contrôler l'énergie sortant du résonateur et d'assurer ainsi un accord optimal du résonateur avec l'espace libre.

Dixième leçon. LES RÉSONATEURS INSTABLES

Etude fondée sur l'optique géométrique. Coefficient d'agrandissement, pertes d'émission. Résonateur symétrique, résonateur télescopique. Nombre de Fresnel équivalent. Sélection

des modes longitudinaux. Sélection par fréquence, sélection d'espace par des absorbeurs de faible épaisseur. Résonateurs dispersifs.

Il a été établi plus haut que pour un résonateur instable, on doit avoir ou bien

$$g_1 g_2 < 0, \tag{10.1}$$

ou bien

$$g_1 g_2 > 1, \tag{10.2}$$

avec $g_1 = 1 - l/2F_1$ et $g_2 = 1 - l/2F_2$. En conséquence, tous les résonateurs instables sont divisés en deux classes — les résonateurs appartenant à la région négative (10.1) et ceux appartenant à la région positive (10.2). Sur le diagramme de stabilité (fig. 9.4), la région d'instabilité positive se trouve dans le premier et le troisième quadrant en dehors de l'hyperbole $g_1 g_2 = 1$, et la région d'instabilité négative se trouve dans le deuxième et le quatrième quadrant.

On peut soumettre le fonctionnement des résonateurs instables à une analyse assez poussée par les méthodes de l'optique géométrique. Dans le cas des résonateurs stables, où la formation des modes par réflexions successives de l'onde sur les miroirs a été analysée conformément aux lois de la diffraction, les modes d'ordres inférieurs ont des pertes par diffraction faibles. La distribution gaussienne transversale impose une limite aux dimensions de la tache du mode et seule une partie négligeable de l'énergie est diffractée par-delà le bord du miroir. L'existence d'une distribution gaussienne résulte de l'action focalisante des miroirs d'une cavité sphérique stable. Cette action focalisante manque dans une cavité instable et la lumière n'est pas concentrée à proximité de son axe. Quoiqu'on puisse considérer que les pertes, dues à ce qu'une partie de l'émission s'échappe au-delà des miroirs, soient des pertes par diffraction, il est plus simple d'analyser les cavités instables dans le cadre de l'optique géométrique et de considérer les rayons perdus comme une source de pertes géométriques. On doit remarquer que dans les cavités instables les pertes géométriques sont intimement liées aux pertes par diffraction des cavités stables et ces deux sortes de pertes doivent se confondre sur les frontières de stabilité.

Supposons que les miroirs des cavités ont de grands nombres de Fresnel et que l'on peut négliger les pertes par diffraction. Puisque l'émission n'est pas focalisée vers l'axe de la cavité, on peut admettre que la distribution de l'émission est homogène sur les miroirs. C'est ce qui distingue les cavités stables et instables. Par ailleurs, le front d'onde de l'émission est toujours sphérique puisque cette forme résulte des conditions aux limites imposées par les miroirs sphériques. Cet aspect est donc commun aux cavités stables et instables.

On admet donc que dans l'approximation de l'optique géométrique la distribution du champ dans la cavité instable, i.e. son mode, résulte de la

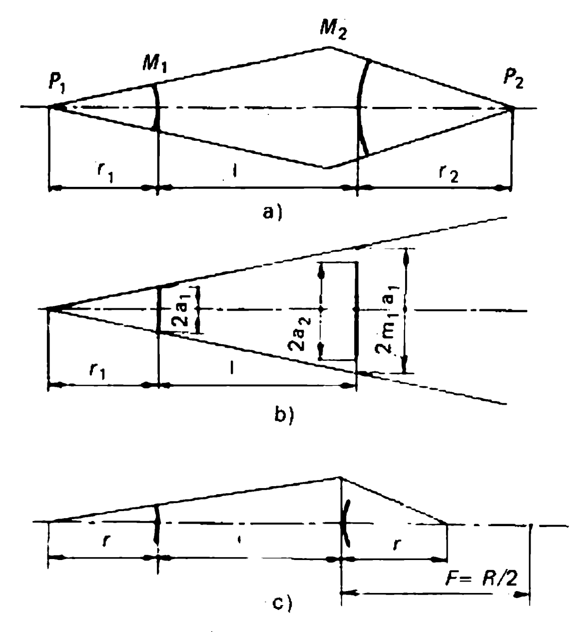


Fig. 10.1. Cavité instable : *a*) cas général ; *b*) construction utilisée dans le calcul des pertes de rayonnement par passage ; *c*) résonateur symétrique à deux extrémités.

superposition de deux ondes sphériques caractérisées par une distribution uniforme de l'intensité sur le front d'onde et issues de deux centres situés tous deux sur l'axe de la cavité. Pour satisfaire à la condition que la trajectoire des rayons se ferme sur elle-même lorsque l'émission fait le tour de la cavité, il faut que chacun de ces centres soit l'image de l'autre par réflexion dans le miroir correspondant. Autrement dit, les rayons issus d'un centre doivent coïncider, après réflexion sur un miroir, avec les rayons issus de l'autre centre. Suivant la disposition des centres des ondes sphériques déterminant le mode de la cavité instable par rapport à ses miroirs, on distingue plusieurs types de cavités instables.

Décrivons d'abord la configuration générale d'une cavité instable formée par les miroirs sphériques M_1 et M_2 (fig. 10.1, *a*). Supposons que l'onde s'éloignant du miroir M_1 soit une onde sphérique de centre P_1, ce point ne se confondant pas nécessairement avec le centre de courbure ou avec le foyer de ce miroir. Une partie de cette onde passera à côté du miroir M_2 et l'autre partie en sera réfléchie. Posons que l'onde sphérique réfléchie soit issue du point P_2. Notons r_1 la distance entre le point P_1 et le miroir M_1, r_2 la distance entre le point P_2 et le miroir M_2 et R_1 et R_2 les rayons de courbure des miroirs.

On a déjà dit que chacun des points P_1 et P_2 doit être l'image de l'autre par réflexion dans les miroirs sphériques correspondants. Alors, en appliquant aux distances conjuguées deux par deux, d'une part, r_1 et $r_2 + l$ et, d'autre part, r_2 et $r_1 + l$, la formule du miroir sphérique écrite dans l'approximation des rayons paraxiaux

$$1/a_1 + 1/a_2 = 1/F = 2/R, \tag{10.3}$$

on obtient les équations

$$\frac{1}{r_1 + l} - \frac{1}{r_2} = -\frac{2}{R_2}, \quad \frac{1}{r_2 + l} - \frac{1}{r_1} = -\frac{2}{R_1}. \tag{10.4}$$

La résolution simultanée des équations (10.4) permet de trouver les positions des centres des ondes sphériques qui déterminent le mode de la cavité. Mais ce qui importe surtout est que les quantités r_1 et r_2 déterminent les pertes par émission de la cavité.

En effet, lors du parcours aller et retour entre les miroirs de la cavité, la dimension transversale du faisceau s'accroît de

$$M = m_1 m_2 \tag{10.5}$$

fois, m_1 et m_2 étant les coefficients d'agrandissement par passage. La figure 10.1, *a* laisse apparaître que

$$m_1 = (r_1 + l)/r_1, \quad m_2 = (r_2 + l)/r_2. \tag{10.6}$$

A la suite d'un grand nombre de passages de la cavité, la section droite du faisceau ne peut augmenter indéfiniment vu les dimensions finies des miroirs. Une partie de l'émission s'échappe par-delà les bords des miroirs. Etant donné que les dimensions de la tache d'une onde sphérique s'accroissent de M fois et que, par hypothèse, l'éclairement des miroirs est uniforme, la densité du flux de rayonnement dans la cavité diminue de M^2 fois. Comme la valeur du coefficient d'agrandissement M ne dépend pas de la dimension des miroirs, le flux de rayonnement total restant dans la cavité diminue de M^2 fois pendant qu'il décrit une boucle dans la cavité. Cela signifie que les pertes relatives d'énergie par émission dans l'espace extérieur au cours d'un parcours aller et retour de la cavité sont égales à

$$A = 1 - 1/M^2 = (M^2 - 1)/M^2 \tag{10.7}$$

et dépendent des valeurs de r_1, r_2 et l, donc de la configuration de la cavité.

Discutons cette question importante. Supposons qu'une onde sphérique divergente ayant un coefficient d'agrandissement angulaire égal à m_1 tombe, en allant de gauche à droite, sur le miroir M_2 ayant une aire de section droite égale à πa_2^2 (fig. 10.1, *b*). Sur le plan de la section droite de M_2, cette onde sphérique à distribution uniforme de l'intensité (par hypothèse)

a une dimension transversale égale à $2m_1a_1$, a_1 étant le rayon du miroir de gauche M_1. Le miroir M_2 ne réfléchit vers M_1 qu'une partie de l'émission parvenue jusqu'à l'endroit où se trouve M_2. Cette partie de l'émission est égale à

$$\Gamma_{21} = a_2^2/m_1^2a_1^2. \tag{10.8}$$

De même, le miroir M_1 réfléchit vers M_2 une partie de l'émission égale à

$$\Gamma_{12} = a_1^2/m_2^2a_2^2. \tag{10.9}$$

A la suite de deux réflexions, il ne subsiste dans la cavité que la partie de l'énergie

$$\Gamma = \Gamma_{12}\Gamma_{21} = 1/m_1^2m_2^2 = 1/M^2. \tag{10.10}$$

Il s'ensuit que, conformément à (10.7), les pertes par rayonnement par aller et retour dans la cavité sont égales à

$$A = 1 - \Gamma = (M^2 - 1)/M^2 \tag{10.11}$$

et ne dépendent pas des dimensions des miroirs de la cavité. Ces calculs simples permettent de déceler la cause physique de ce résultat. Si l'on diminue les dimensions de l'un des miroirs, on détermine une diminution proportionnelle de l'angle d'ouverture des ondes progressant dans les deux sens. Par conséquent, les dimensions transversales relatives (fig. 10.1, *b*) ne changent pas, et par suite les parts relatives de la puissance perdue ne changent pas.

Le calcul des pertes par rayonnement dans les cavités instables peut donc être effectué par les méthodes de l'optique géométrique. Ces pertes sont parfois appelées géométriques. L'approximation ondulatoire conduit à des résultats peu différents.

La résolution des équations (10.4) dans le cas général, quoique réalisable, conduit à des formules compliquées pour r_1, r_2 et M. Examinons deux cas particuliers. C'est la cavité symétrique à deux extrémités (fig. 10.1, *c*) qui a fait l'objet d'études théoriques les plus poussées. Puisque dans ce cas $R_1 = R_2 = R$, on a $r_1 = r_2 = r$, et l'on tire des équations (10.4)

$$r = \frac{l}{2}\left(\sqrt{1 + 2R/l} - 1\right), \tag{10.12}$$

ainsi que

$$M = \frac{l + r}{r} = \frac{\sqrt{1 + 2R/l} + 1}{\sqrt{1 + 2R/l} - 1}. \tag{10.13}$$

Dans le cas de la cavité symétrique, le coefficient d'agrandissement et les pertes par rayonnement sont généralement évalués par passage. C'est ce type de cavité qui a fait l'objet de l'étude la plus complète dans l'approximation ondulatoire sur la base des équations intégrales de Fox et Lee ; les

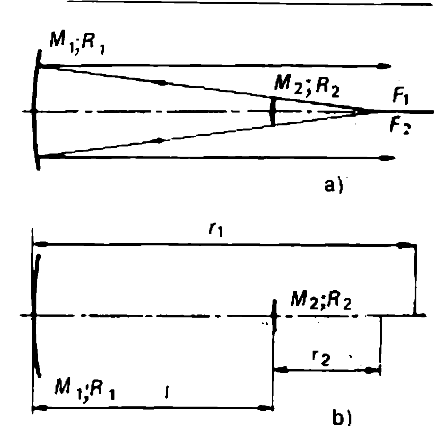


Fig. 10.2. Cavité télescopique instable.

résultats obtenus ont confirmé le bien-fondé de l'approximation de l'optique géométrique.

Un type intéressant de cavité instable est celui de la cavité confocale asymétrique avec $R_1 + R_2 = 2l$. Dans cette formule, les rayons de courbure des miroirs figurent en tant que quantités algébriques, en ce sens que le rayon de courbure d'un miroir convexe est négatif. Pour la pratique, on utilise surtout les cavités où l'émission sort par une extrémité. C'est pour cela que la cavité la plus utilisée est formée par un miroir concave ($R_1 > 0$) et un miroir convexe ($R_2 < 0$) ; on l'appelle cavité télescopique.

La figure 10.2, *a* représente le schéma d'une cavité télescopique. Procédons à son étude optico-géométrique à l'aide de la figure 10.2, *b*. Avec les notations utilisées sur cette figure les équations (10.4) s'écrivent

$$\frac{1}{r_1} + \frac{1}{l + r_2} = \frac{2}{R_1}, \quad \frac{1}{r_2} + \frac{1}{r_1 - l} = \frac{2}{R_2}, \tag{10.14}$$

où r_1, r_2, R_1, R_2 désignent les modules des distances correspondantes. On déduit aisément de (10.14) une relation entre r_1 et r_2:

$$r_2 = \frac{(r_1 - l)R_2/2}{r_1 - l - R_2/2}, \tag{10.15}$$

et une équation pour r_1 :

$$r_1^2 + r_1 \frac{l(l + R_2)}{R_1/2 - R_2/2 - l} - \frac{l(l + R_2)R_1/2}{R_1/2 - R_2/2 - l} = 0. \tag{10.16}$$

Lorsqu'on fait tendre le système vers la structure confocale (pour $R_1 - R_2 \to 2l$) $r_1 \to \infty$ et $r_2 \to R_2/2$ (i.e. tend à se confondre avec le foyer). Le mode vibratoire de la cavité se présente dans ce cas comme la superposition d'une onde sphérique et d'une onde plane, d'où la dénomination de

« cavité télescopique ». Le coefficient d'agrandissement de la cavité télescopique est, selon la figure 10.2, égal à

$$M = (r_2 + l)/r_2 = F_1/F_2 = R_1/R_2, \tag{10.17}$$

et le coefficient de couplage avec le milieu extérieur est

$$A = (M^2 - 1)/M^2 = (R_1^2 - R_2^2)/R_1^2. \tag{10.18}$$

On notera que la cavité télescopique appartient à la branche positive des cavités instables puisqu'un calcul direct montre que $g_1 g_2 > 1$.

Bien que l'approximation de l'optique géométrique donne d'assez bons résultats pour les cavités instables, l'approche ondulatoire fournit cependant des résultats plus complets. L'approche ondulatoire montre que la phase de la solution ondulatoire correspond à un front d'onde presque sphérique avec un rayon presque égal à celui que fournit l'approche géométrique. Les modes vibratoires, i.e. les distributions spatiales du champ qui se reproduisent d'elles-mêmes, existent effectivement. Mais la distribution radiale des amplitudes du champ dans la cavité se distingue de celle que donne l'approche géométrique en ce qu'elle présente une structure annulaire due à la diffraction.

L'analyse des pertes par diffraction a montré qu'il était opportun d'introduire un nombre de Fresnel équivalent $N_{\text{Féq}}$ dont les valeurs demi-entières font apparaître nettement le mode d'ordre inférieur caractérisé par les plus petites pertes ; la différence entre les pertes du mode fondamental et celles des autres modes est relativement grande. Le lien entre l'étude optico-géométrique, qui a été exposée plus haut, et l'approche ondulatoire se manifeste en ce que le nombre de Fresnel équivalent $N_{\text{Féq}}$ se laisse exprimer en fonction du coefficient d'agrandissement géométrique M. Dans le cas d'une cavité symétrique à deux sorties

$$N_{\text{Féq}} = \frac{M^2 - 1}{2M} \cdot N_{\text{F}}, \quad N_{\text{F}} = \frac{a^2}{l\lambda}, \tag{10.19}$$

et dans le cas d'une cavité télescopique

$$N_{\text{Féq}} = \frac{M - 1}{2} N_{\text{F}}, \quad N_{\text{F}} = \frac{a_2^2}{l\lambda}. \tag{10.20}$$

Pour les valeurs demi-entières de $N_{\text{Féq}}$, c'est-à-dire dans les conditions où le mode d'ordre inférieur se manifeste nettement, ses pertes sont notablement plus petites (mais pas beaucoup plus petites) que les pertes que prévoit l'approximation de l'optique géométrique. La différence est la plus grande pour une valeur de M à peine supérieure à l'unité et devient pratiquement inexistante pour $M \geqslant 2{,}5$, ce qui correspond bien au passage de l'approche ondulatoire à celle de l'optique géométrique.

Récapitulons encore une fois les principaux avantages des cavités instables. Tout d'abord c'est l'important volume du mode et l'absence de la compression gaussienne de la distribution du champ vers l'axe du résonateur. Ensuite c'est la bonne sélection des modes transversaux liée à l'importance des pertes géométriques par rayonnement. Quoique nous n'ayons pas abordé la théorie ondulatoire rigoureuse des cavités instables, on conçoit fort bien que la nature des pertes géométriques est proche de celle des pertes par diffraction, surtout près de la frontière de stabilité des cavités résonnantes. Il s'ensuit que les pertes totales dans les cavités instables doivent dépendre grandement de l'indice transversal et c'est ce qui détermine la sélection des modes d'après cette propriété. Du point du vue de la pratique, les cavités instables présentent l'avantage de n'avoir à utiliser que des réflecteurs, que ce soit pour former la cavité ou pour la sortie de l'émission. On peut donc utiliser des miroirs métalliques et c'est un gros avantage pour les installations de puissance de la gamme de l'infrarouge.

Parmi les inconvénients des cavités instables citons tout d'abord le fait qu'on ne peut les utiliser qu'avec des milieux actifs à forte amplification. Bien souvent on considère comme un inconvénient le fait que la section droite du faisceau sortant a une forme annulaire. Avec une cavité télescopique, le diamètre intérieur de l'anneau est égal à $2a_2$ et le diamètre extérieur à $2Ma_2$, a_2 étant le rayon du miroir convexe de la figure 10.2, *a*. Mais la tache sombre disparaît dans la zone d'onde lointaine ou dans le plan focal de la lentille à la suite de la focalisation du faisceau. L'existence d'anneaux de diffraction dans la section droite du faisceau, prévue par la théorie ondulatoire des cavités instables, ne cause aucune difficulté supplémentaire dans le cas général.

Pour conclure les leçons consacrées aux cavités résonnantes, il est opportun de remarquer qu'il existe aujourd'hui des méthodes matricielles et des méthodes utilisant des diagrammes pour le calcul des systèmes optiques, des cavités, des guides à lentilles, des convertisseurs, des adaptateurs de faisceaux gaussiens, etc.

Reprenons la question de la sélection des modes. Dans ce qui précède, on avait maintes fois indiqué que l'utilisation des résonateurs ouverts pour les radiations de courtes longueurs d'onde était déterminée par la nécessité de raréfier le spectre des vibrations, celui-ci devenant plus resserré (proportionnellement à ν^2) à mesure que la fréquence augmentait. On a montré que dans les résonateurs ouverts cette raréfaction du spectre était réalisée en augmentant les pertes radiatives des modes indésirables et en assurant un faible niveau de pertes pour les types de vibrations utiles.

Néanmoins, le spectre des vibrations propres reste encore trop fourni dans les résonateurs ouverts, surtout dans ceux qui sont stables, pour pouvoir satisfaire aux exigences qu'imposent la majorité des applications des

lasers. Les méthodes que l'on utilise pour améliorer la structure de mode de l'émission laser constituent ce qu'on appelle la sélection des modes. Toutes les méthodes de sélection des modes tendent à accroître les pertes d'énergie pour les modes indésirables, tout en maintenant un grand facteur de qualité de la cavité pour le mode sélectionné. La sélection des modes transversaux (voir leçon 9) se fonde sur les différences qu'ils présentent dans la structure transversale du champ. Les modes longitudinaux présentent la même structure transversale du champ mais se distinguent les uns des autres par le nombre de demi-longueurs d'onde contenues dans l'espace compris entre les miroirs formant la cavité. Il s'ensuit que les modes longitudinaux se distinguent les uns des autres par les fréquences et par la position des nœuds de l'onde stationnaire le long de l'axe de la cavité.

La méthode la plus générale de sélection des modes longitudinaux se fonde sur les différences des fréquences des modes, ce qui entraîne la nécessité d'introduire dans la cavité du laser des éléments dispersifs à bande passante étroite. Parmi les éléments dispersifs, on peut citer les étalons de Fabry-Pérot, les prismes et les réseaux de diffraction, les miroirs dont les coefficients de réflexion dépendent de la fréquence, etc.

Le procédé le plus simple de sélection des modes longitudinaux consiste à utiliser la dépendance de l'amplification de la substance active du laser avec la fréquence. Pour les modes longitudinaux la distance entre les modes est égale à

$$\Delta\nu_q = c/2l \qquad (10.21)$$

(cf. formules (6.14) à (6.17)). Si la distance entre les modes est plus grande que la largeur de la raie d'amplification :

$$\Delta\nu_q > \Delta\nu_r \qquad (10.22)$$

et si les fréquences centrales d'un mode quelconque sont proches de celles de la raie d'amplification :

$$\nu_q \approx \nu_r, \qquad (10.23)$$

l'émission laser sera monomode (mode longitudinal) et donc monofréquence. Conformément à la formule (6.33), la fréquence d'émission dépend dans ce cas de l'accord de la fréquence du mode à la fréquence de la raie, ainsi que du rapport de leurs facteurs de qualité. Ce procédé de sélection des modes longitudinaux peut être efficace dans le cas des lasers à gaz, dont les raies d'amplification sont suffisamment étroites. On peut citer, par exemple, le laser à CO_2 à basse pression qui présente une raie d'amplification de 60 MHz de largeur avec une cavité de 1 m de long ($\Delta\nu_q$ = 150 MHz). Mais dans la majorité des cas, les raies d'amplification des substances actives sont beaucoup plus larges et la mise en œuvre de ce procédé exigerait l'utilisation de cavités beaucoup trop courtes.

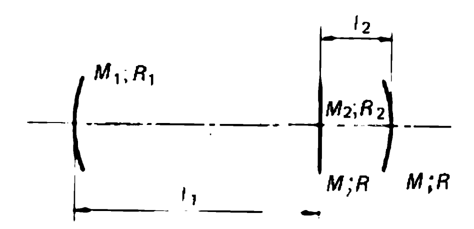


Fig. 10.3. Cavité à miroir dispersif R_2.

La méthode des miroirs dispersifs est largement utilisée. Considérons le schéma représenté sur la figure 10.3. Dans cette cavité à trois miroirs, lorsque $l_2 \ll l_1$, on peut considérer que les deux miroirs de droite se comportent comme un seul miroir ayant un coefficient de réflexion R_2 dépendant de la fréquence. On peut se faire une idée de la forme de la dépendance $R_2(\lambda)$ en utilisant la formule (6.7) du coefficient de transmission d'un étalon de Fabry-Pérot régénéré. Pour $K = 1$, dans l'approximation des ondes planes, le coefficient de transmission de deux miroirs parallèles de coefficient de réflexion R se trouvant à une distance l_2 l'un de l'autre est égal, d'après (6.7), à

$$D = \frac{(1 - R)^2}{1 - 2R\cos(4\pi l_2/\lambda) + R^2} . \tag{10.24}$$

Le coefficient de réflexion R_2 du miroir équivalent est donc égal à

$$R_2 = 1 - D = 2R \frac{1 - \cos(4\pi l_2/\lambda)}{1 - 2R\cos(4\pi l_2/\lambda) + R^2} . \tag{10.25}$$

Pour $\cos(4\pi l_2/\lambda) = 1$, R_2 s'annule, et à ces fréquences la cavité formée par les miroirs R_1 et R_2 n'a pas de facteur de qualité, grâce à quoi s'effectue la sélection des modes longitudinaux convenables. Le schéma de la figure 10.3 ni la formule (10.25) ne peuvent prétendre exprimer l'aspect quantitatif du processus de sélection des modes longitudinaux réalisé en introduisant dans la cavité du laser un élément dispersif supplémentaire. Cette figure et la formule ne sont données qu'à titre illustratif.

En pratique on utilise diverses modifications de la méthode du miroir sélectif. Dans les projets d'étude, on doit tenir compte de la nécessité d'accorder la distribution transversale du champ, i.e. d'accorder les modes, dans toutes les cavités résonnantes partielles de la cavité à miroirs multiples et aussi de tenir compte de l'influence réciproque de ces cavités partielles.

Lorsqu'il s'agit de la sélection de modes longitudinaux, on pourrait utiliser en principe les différences entre les distributions longitudinales du champ des différents modes. Chaque mode longitudinal est une onde sta-

tionnaire. La distance entre les nœuds de ces ondes stationnaires varie avec le mode.

Considérons le mode ayant l'indice longitudinal

$$q = 2l/\lambda. \qquad (10.26)$$

La distance entre les nœuds les plus proches du miroir des modes q et $q + 1$ est égale à

$$\Delta_1 = \frac{\lambda_q}{2} - \frac{\lambda_{q+1}}{2} = \frac{l}{q^2} = \frac{\lambda^2}{4l} \qquad (10.27)$$

et est donc très petite. A mesure qu'on s'éloigne du miroir, la distance entre les nœuds s'accroît et pour le nœud du mode q le numéro $q/2$ vaut

$$\Delta_2 = \left(\frac{\lambda_q}{2} - \frac{\lambda_{q+1}}{2}\right)\frac{q}{2} = \frac{l}{2q} = \frac{\lambda}{4}, \qquad (10.28)$$

ce qui signifie que le nœud du mode q coïncide avec un ventre du mode $q + 1$. Cela se produit à une distance du miroir égale à

$$L_2 = \frac{\lambda_q}{2}\frac{q}{2} = \frac{l}{2}, \qquad (10.29)$$

donc au milieu de la cavité. Mais en ce point se trouve le ventre du mode $q + 2$, le nœud du mode $q + 3$, le ventre du mode $q + 4$, etc. Il est donc impossible de mettre à profit cette répartition spatiale des nœuds et des ventres des modes longitudinaux pour réaliser leur sélection.

Il est évident que le nombre total de modes parmi lesquels il faut procéder à une sélection est égal à

$$m = \Delta\nu_r/\Delta\nu_q. \qquad (10.30)$$

Supposons qu'on cherche un procédé permettant de sélectionner le mode q et que la fréquence centrale ν_q de ce mode coïncide avec la fréquence centrale de la raie d'amplification ν_r. Dans ces conditions, les modes longitudinaux les plus lointains dont il faut se débarrasser portent les numéros $q \pm m/2$. Près du premier nœud du mode q la distance entre les nœuds est encore trop petite :

$$\Delta_3 = \frac{\lambda_q}{2} - \frac{\lambda_{q \pm m/2}}{2} = \pm\frac{m}{2}\frac{l}{q^2} = \pm\frac{m}{2}\frac{\lambda^2}{4l}. \qquad (10.31)$$

Le numéro du N-ième nœud du mode q, qui est le premier à coïncider avec un ventre du mode $q \pm m/2$, est donné par l'équation

$$\frac{m}{2}\frac{l}{q^2}N = \frac{\lambda}{4} \qquad (10.32)$$

et a pour valeur

$$N = \frac{\lambda}{2} \frac{q^2}{ml} = \frac{q}{m}. \tag{10.33}$$

Cela se produit à une distance du miroir

$$L = N \frac{\lambda_q}{2} = \frac{l}{m} = \frac{\Delta\nu_q}{\Delta\nu_r} l. \tag{10.34}$$

En ce point la distance entre les nœuds des modes voisins q et $q + 1$ est égale, conformément à (10.27), (10.33), (10.30) et (10.26), à

$$\Delta = \Delta_1 N = \frac{\Delta\nu_q}{\Delta\nu_r} \frac{\lambda}{2}. \tag{10.35}$$

Pour de nombreux lasers à gaz cette valeur représente une fraction notable de la longueur d'onde.

Les considérations ci-dessus suggèrent l'idée de la méthode de sélection suivante des modes longitudinaux.

Plaçons la lame mince d'un absorbeur partiellement transparent au nœud numéro N du mode q que l'on cherche à isoler. Si l'épaisseur de l'absorbeur est beaucoup plus petite que la longueur d'onde, la présence de l'absorbeur dans le nœud où l'intensité du champ électrique du mode q est égale à zéro ne provoquera aucune perte d'énergie de ce mode. Tous les autres modes possèdent en ce point de l'axe de la cavité une intensité de champ électrique différente de zéro et subiront donc des pertes d'énergie, ce qui donnera lieu à leur discrimination (fig. 10.4). Cette méthode de sélection d'espace des modes longitudinaux par les absorbeurs de faible épaisseur est utilisée dans les lasers à gaz, plus particulièrement dans le spectre visible. Pour fabriquer un absorbeur partiellement transparent, on dépose une couche de métal de 1 à 10 nm d'épaisseur sur un substrat transparent à poli optique.

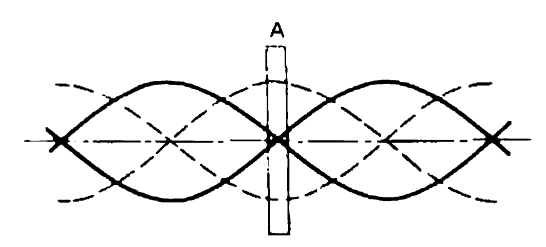


Fig. 10.4. Discrimination des modes longitudinaux par une lame mince d'absorbeur. La couche en traits discontinus représente l'onde stationnaire de l'un des modes à éliminer, et la couche en trait plein représente l'onde stationnaire du mode sélectionné (A — pellicule absorbante semi-transparente).



Fig. 10.5. Cavité à prisme dispersive.

Du fait de la mauvaise tenue optique de ces couches minces, on ne les utilise que dans les lasers de puissance moyenne.

L'introduction dans la cavité d'un laser d'éléments dispersifs à bande passante étroite permet non seulement de procéder à la sélection de modes longitudinaux mais encore, dans le cas où la raie d'amplification est suffisamment large et la fréquence de l'élément dispersif est réglable, d'effectuer un changement de fréquence de l'émission laser. Les cavités comportant des éléments dispersifs (prismes, réseaux de diffraction, étalons de Fabry-Pérot), qui sont utilisées dans les lasers à fréquence d'émission réglable, sont appelées cavités dispersives. La cavité dispersive la plus simple s'obtient en introduisant un prisme dans une cavité résonnante ordinaire (fig. 10.5).

Afin de réduire les pertes occasionnées par l'introduction d'un prisme, on s'arrange pour que le rayonnement tombe sur le prisme sous l'angle de Brewster. La dispersion du prisme est généralement insuffisante pour produire une émission vraiment monochromatique et pour réajuster finement la fréquence d'émission. C'est pour cela que l'on utilise surtout des cavités dispersives plus compliquées (fig. 10.6). L'introduction d'un étalon de Fabry-Pérot permet d'isoler un seul mode longitudinal et le réseau supprime la génération sur les maximums de transmission de l'étalon qui sont indésirables. Un télescope sert à élargir le faisceau sortant du milieu actif, afin de pouvoir utiliser efficacement l'étalon et le réseau de dispersion.

Les cavités dispersives du type représenté sur la figure 10.6 ont permis d'obtenir une émission monomode pour les indices transversal et longitudinal, à fréquence accordable dans une large gamme de valeurs.

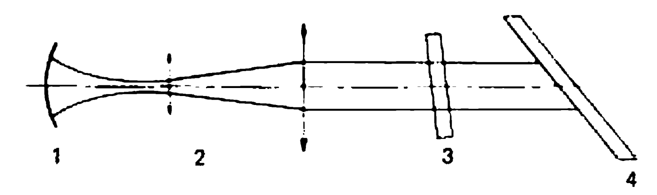


Fig. 10.6. Cavité dispersive compliquée : *1* — miroir, *2* — télescope, *3* — étalon de Fabry-Pérot, *4* — réseau de dispersion.

Onzième leçon. SYNCHRONISATION EN MODES

Génération d'une émission sur plusieurs modes longitudinaux. Caractère irrégulier du spectre d'émission. Entraînement des modes. Synchronisation en modes. Durée et période de répétition des impulsions dans la synchronisation en modes. Synchronisation active et passive. Autosynchronisation. Modulation de Q. Lamb-dip.

Dans les leçons précédentes, on a démontré que l'émission optique était possible et l'on a examiné les propriétés des résonateurs ouverts servant à cette fin. La structure de mode du champ dans les cavités détermine le contenu de mode de l'émission générée. L'existence de plusieurs modes dans l'émission laser conduit à l'apparition de plusieurs effets intéressants.

Si les modes transversaux ont été discriminés et si la génération de plusieurs modes longitudinaux est possible, un élargissement inhomogène de la transition radiative $\Delta\nu_r$ supérieur à la distance $\Delta\nu_q$ entre les modes:

$$\Delta\nu_r > \Delta\nu_q \tag{11.1}$$

entraîne une émission sur plusieurs fréquences séparées les unes des autres de la fréquence

$$\Delta\nu_q = c/2l \tag{11.2}$$

appelée fréquence de battement des modes. L'émission a lieu sur une fréquence proche de la fréquence centrale ν_r de la raie de la transition radiative, approximativement égale à la fréquence ν_q du mode longitudinal q :

$$\nu_r \approx \nu_q = qc/2l, \quad q = 2l/\lambda \gg 1. \tag{11.3}$$

Le nombre de modes générés dépend du rapport $\Delta\nu_r/\Delta\nu_q$, étant bien entendu que les conditions d'auto-excitation sont satisfaites en tout point de la raie élargie de façon non homogène ($\Delta\nu_r$). Comme l'élargissement inhomogène correspond à une émission (ou à une absorption) de rayonnement par différentes particules dans différents intervalles spectraux, dans le cas d'une émission à modes multiples les conditions d'auto-excitation doivent être indépendamment satisfaites pour plusieurs (environ $\Delta\nu_r/\Delta\nu_q$) oscillateurs indépendants disposés cependant dans une même cavité. Il s'ensuit que le spectre d'émission résultant correspond à une addition chaotique des émissions de plusieurs oscillateurs et présente donc un caractère irrégulier. A la sortie du laser le champ résultant peut être représenté sous la forme

$$E(t) = \sum_{q_0 - N/2}^{q_0 + N/2} A_q \sin[2\pi(\nu_r + q\Delta\nu_q)t + \varphi_q], \tag{11.4}$$

où $N \approx \Delta\nu_r/\Delta\nu_q$, $q_0 = 2l/\lambda_0$ est le numéro du mode longitudinal correspondant au centre de la raie.

La phase φ_q de chacun des N oscillateurs indépendants n'étant pas liée de façon régulière à la phase de l'un quelconque des autres oscillateurs,

la distribution spectrale est aléatoire. On doit remarquer cependant que le degré de monochromaticité reste élevé même dans ce cas parce que les fréquences d'émission des différentes composantes spectrales restent dans les limites de $\Delta\nu_r$. Considérons l'élargissement inhomogène par effet Doppler. Conformément à la formule (2.30), dans la partie visible du spectre $\Delta\nu_r \approx 1000$ à 1500 MHz. Pour la longueur usuelle $l = 1$ m des lasers à gaz on a $\Delta\nu_q = 150$ MHz. Par conséquent, N est égal à 5-10. C'est le nombre d'oscillateurs indépendants qui émettront simultanément, à moins que des mesures spéciales auront été prises pour les synchroniser ou pour supprimer l'émission de tous les oscillateurs, sauf un.

Ainsi, l'utilisation d'une cavité à modes multiples, surtout si la raie d'amplification est assez large, conduit à l'apparition de plusieurs fréquences d'émission pratiquement équidistantes qui correspondent à plusieurs oscillateurs indépendants. Une autre conséquence de cet état de choses est que les fréquences d'émission ne sont pas exactement équidistantes de $c/2l$, mais sont décalées légèrement vers le centre de la raie. Pour établir la formule (6.33) de la fréquence d'émission, on a analysé les conditions d'auto-excitation de phase, i.e. les conditions du bilan des phases pour l'autoexcitation. La raie d'amplification (d'absorption) de résonance introduit dans la cavité ses propriétés dispersives. Si la raie est suffisamment large pour recouvrir plusieurs modes, ces propriétés dispersives se manifestent de la façon suivante.

Pour les modes correspondant à des fréquences inférieures à la fréquence centrale, la dispersion anormale par résonance provoque une diminution de l'indice de réfraction de la substance, la longueur optique diminue et par suite les fréquences de résonance des modes correspondants augmentent, se déplacent donc vers le centre de la raie. D'autre part, pour les modes ayant des fréquences supérieures à la fréquence centrale, la dispersion anormale du matériau provoque une augmentation de l'indice de réfraction, la longueur optique s'accroît, et les fréquences de résonance des modes correspondants diminuent et se déplacent vers le centre de la raie. Autrement dit, pour une valeur donnée de q, du fait d'une variation supplémentaire δn de l'indice de réfraction, la condition du nombre entier de demi-longueurs d'onde doit s'écrire sous la forme $l(n + \delta n) = q(\lambda + \delta\lambda)/2$, ce qui entraîne une variation correspondante de la fréquence du mode de $\delta\nu/\nu = -\delta\lambda/\lambda$.

Cet effet dépend de l'allure de la courbe de dispersion anormale accompagnant une inversion de population et augmente à mesure qu'on s'éloigne du centre de la raie. Comme l'allure de la dépendance $n = n(\nu)$ peut être très compliquée lorsque le milieu actif est excité, surtout pour les raies à élargissement inhomogène, on peut s'attendre à une fission de la fréquence des modes, à leur entraînement vers le centre de la raie ou à leur éloigne-

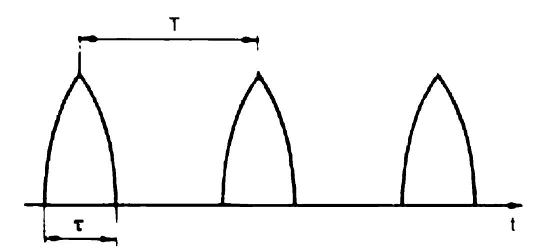


Fig. 11.1. Succession périodique des impulsions vidéo.

ment de celui-ci, etc., à la suite de quoi les fréquences d'émission des modes longitudinaux ne sont plus équidistantes. Ces effets sont petits, par exemple pour un laser à hélium-néon les déplacements des fréquences sont égaux à 20-200 kHz. Il existe cependant des cas où l'on doit tenir compte de l'effet d'entraînement de fréquence des modes.

Ces remarques montrent que dans les cas d'une émission à modes multiples, l'émission sortante varie au cours du temps de façon irrégulière, d'une part, parce que les phases des modes sont aléatoires et, d'autre part, parce que les émissions des modes ne sont pas simultanées et leurs amplitudes ne sont pas exactement les mêmes. Mais si l'on s'arrange pour que l'émission sur tous les modes soit simultanée, avec des amplitudes approximativement égales et avec des rapports de phase fixés, on voit apparaître un effet curieux.

Selon l'analyse de Fourier, une succession périodique d'impulsions identiques se reproduisant avec une période donnée T (fig. 11.1) peut être représentée par une série de vibrations harmoniques discrètes:

$$F(t) = \frac{F_0}{2} + \sum_{m=1}^{\infty} \left(F_m \cos 2\pi \frac{mt}{T} + F'_m \sin 2\pi \frac{mt}{T} \right). \tag{11.5}$$

La décomposition spectrale (11.5) correspond à un spectre équidistant, adjacent à la fréquence zéro, l'intervalle de fréquence entre les composantes voisines étant égal à la fréquence de répétition des impulsions. On sait que la largeur totale de la décomposition spectrale de $F(t)$ est inversement proportionnelle à la durée de l'une des impulsions de la succession périodique de τ. Dans l'expression (11.5) la largeur du spectre dépend de la valeur de m pour laquelle les amplitudes spectrales F_m et F'_m ne sont pas trop petites.

La fonction $F(t)$ décrit une succession d'impulsions vidéo. Ce sont des impulsions qui, se succédant avec la période T et ayant une durée $\tau \ll T$, peuvent servir d'enveloppe à un processus de haute fréquence, dont la fréquence porteuse $\nu \gg 1/\tau$ (fig. 11.2). Ce processus impulsif périodique de haute fréquence peut être écrit, par exemple, sous la forme

$$E(t) = AF(t) \cos 2\pi\nu t + BF(t) \sin 2\pi\nu t, \tag{11.6}$$

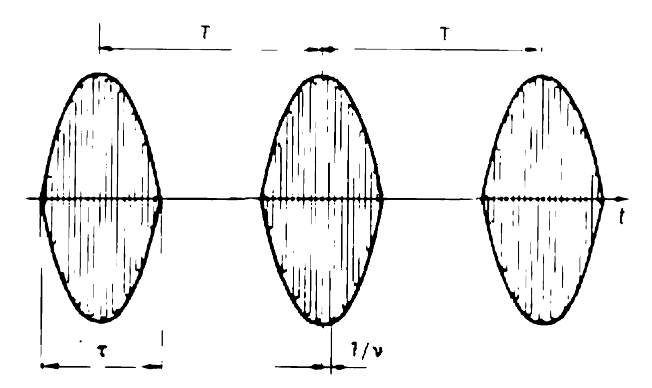


Fig. 11.2. Enveloppe impulsive d'un processus de haute fréquence.

où A et B sont des constantes arbitraires. Il découle de (11.6) et (11.5) que le spectre de fréquence du processus $E(t)$ se compose d'une succession équidistante de composantes spectrales séparées par un intervalle (égal à la fréquence $1/T$ de répétition des impulsions), centrée sur la fréquence ν. Le nombre de composantes (ou ce qui revient au même, la largeur totale du spectre) est inversement proportionnel à la durée τ d'une impulsion.

A une succession périodique de courtes impulsions de vibrations haute fréquence correspond donc une somme d'un grand nombre de vibrations monochromatiques spectralement équidistantes avec des rapports de phase bien déterminés.

On a montré plus haut que le spectre des modes longitudinaux d'un résonateur ouvert était peu différent d'un spectre équidistant. C'est pour cela que les lasers, dont la raie d'amplification de la substance active recouvre un grand nombre de modes longitudinaux, peuvent émettre des radiations sous forme d'une succession de brèves impulsions. Pour qu'il en soit ainsi, il faut qu'un grand nombre de modes participent à l'émission, que le spectre des fréquences des modes émis soit rigoureusement équidistant et que leurs phases soient synchronisées. Le régime d'émission correspondant est appelé régime de synchronisation en mode.

On peut produire ce régime à l'aide d'une modulation périodique des paramètres de la cavité résonnante du laser. L'émission produite sera alors modulée et son spectre comportera donc des composantes supplémentaires, désaccordées de la fréquence porteuse à des fréquences qui sont des multiples de la fréquence de modulation. Si la fréquence de modulation est égale à la fréquence des battements de modes (l'espacement des modes) (11.2), les fréquences latérales du spectre de chaque mode coïncideront avec les fréquences des modes voisins et joueront l'une pour l'autre le rôle de force excitatrice. Comme chacun des modes d'émission considéré isolément est

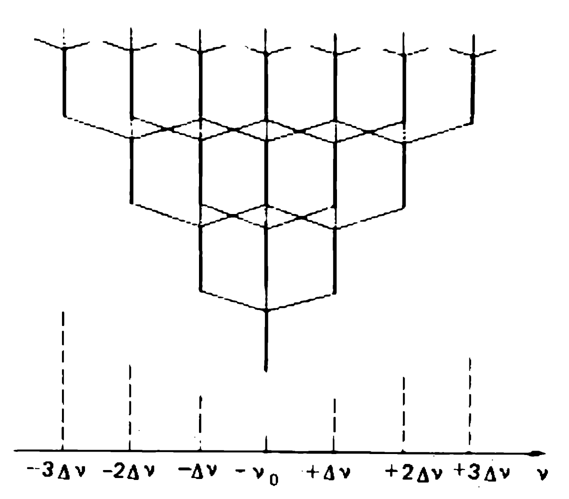


Fig. 11.3. Schéma illustrant le processus de synchronisation des modes dans le cas d'une modulation d'amplitude avec une fréquence $\Delta\nu$ des battements de modes.

un système auto-oscillant indépendant, sous l'action d'une force excitatrice ayant une fréquence proche de la fréquence de ses oscillations propres, il sera soumis à une synchronisation forcée. Comme la synchronisation des systèmes auto-oscillants présente une bande d'accrochage finie, un spectre de modes non parfaitement équidistants, par exemple par suite d'un effet d'entraînement, n'affectera pas le résultat. La synchronisation rend les modes rigoureusement équidistants. Le nombre total de modes synchronisés dépend de la largeur de la raie d'amplification, des pertes dans la cavité, de ses propriétés dispersives, des écarts à l'espacement équidistant des modes, de la profondeur et du type de modulation, etc.

Dans le cas simple d'une modulation d'amplitude, on peut visualiser le processus de la synchronisation des modes à l'aide de la figure 11.3 qui illustre, tout conventionnellement d'ailleurs, la décomposition du spectre de chaque mode en composantes et leur accrochage mutuel.

La condition d'une synchronisation forcée est le maintien du déphasage existant entre les oscillations synchronisées.

Désignons par $\Delta\varphi_q$ la différence de phase de deux modes voisins, par $\Delta\omega_q$ la différence des fréquences, par $\omega_q \approx \omega_r$ la fréquence du mode central et posons que sa phase soit égale à zéro. L'amplitude des oscillations de tous les modes est la même et égale à E_0. Le champ résultant de $2n + 1$ modes forcément synchronisés est alors donné par la somme

$$E(t) = \sum_{k=-n}^{k=n} E_0 \exp j[(\omega_r + k\Delta\omega_q)t + k\Delta\varphi_q]. \tag{11.7}$$

Le calcul de la somme (11.7) se fait aisément à l'aide de l'identité $\sum_{-n}^{n} e^{jk\alpha} = 1 + 2\sum_{1}^{n}\cos k\alpha$, où

$$\sum_{0}^{n} \cos k\alpha = \frac{\cos \frac{n\alpha}{2} \sin \frac{n+1}{2}\alpha}{\sin \frac{\alpha}{2}}$$

Après quelques calculs simples, on trouve

$$E(t) = E_0 \frac{\sin \frac{2n+1}{2}(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q)}{\sin \frac{\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q}{2}} e^{j\omega_r t}. \tag{11.8}$$

Ce résultat montre que le champ total qui résulte des interférences de $2n + 1 = N$ oscillations synchronisées se présente comme une oscillation périodiquement modulée en amplitude avec une fréquence porteuse ω_r qui est égale à la fréquence du mode central (fréquence au centre de la raie d'amplification) et une enveloppe

$$A(t) = E_0 \frac{\sin \frac{N}{2}(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q)}{\sin \frac{\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q}{2}} \tag{11.9}$$

La figure 11.4 illustre l'enveloppe de l'intensité $A^2(t)$ pour le cas de la synchronisation de sept modes ($N = 7$).

L'examen de l'expression (11.9) permet de tirer plusieurs conclusions importantes. On voit tout d'abord que les valeurs de crête de l'enveloppe sont égales à NE_0, ce qui conduit, comme toujours dans les interférences, à une multiplication par N du pic d'intensité par rapport à l'addition non cohérente des intensités de N vibrations indépendantes. La période de répé-

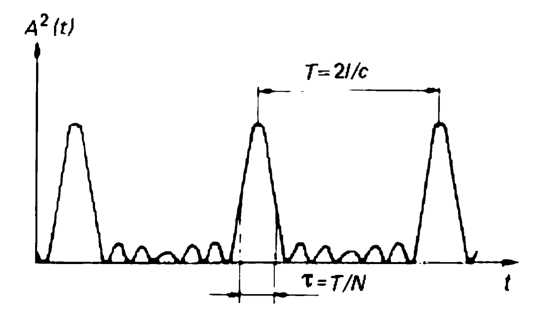


Fig. 11.4. Enveloppe de l'intensité dans le cas de la synchronisation de sept modes.

tition des impulsions d'intensité maximale est déterminée par les instants où le dénominateur de (11.9) devient égal à zéro ; cette période est égale à

$$T = 2\pi/\Delta\omega_q = 1/\Delta\nu_q = 2l/c \qquad (11.10)$$

et coïncide donc avec la période des battements de modes ou, ce qui revient au même, avec le temps que met l'émission pour faire le tour de la cavité. On peut donc représenter la succession d'impulsions qui se forment pendant la synchronisation des modes par une seule impulsion qui se propage entre les miroirs de la cavité tantôt dans un sens, tantôt dans l'autre.

La durée d'une impulsion faisant partie d'une succession d'impulsions, ou comme on le dit, la durée d'un petit pic appartenant à un train d'impulsions des modes synchronisés (définie comme l'intervalle de temps au cours duquel est émise presque toute l'énergie correspondant à un tour de l'émission dans la cavité), est donnée par la période d'annulation du numérateur de (11.9); elle est égale à

$$\tau = 1/N\Delta\nu_q = T/N. \qquad (11.11)$$

Comme le nombre de modes à synchroniser ne peut être supérieur au nombre total de modes pouvant se situer sur la largeur $\Delta\nu_r$ de la raie d'amplification ($N \leqslant \Delta\nu_r/\Delta\nu_q$), la durée minimale de l'impulsion est limitée par l'inverse de la largeur de la raie d'amplification : $\tau \geqslant 1/\Delta\nu_r$. Cette assertion découle du théorème de Fourier. Les durées usuelles des impulsions ultracourtes d'émission laser sont de 1 ns pour les lasers à gaz et de 1 ps pour les lasers à cristal.

Les relations (11.10) et (11.11) sont les principales formules décrivant la synchronisation en mode. Il existe une multitude de procédés de synchronisation, mais ils reposent tous sur la modulation périodique des paramètres de la cavité afin d'obtenir des composantes spectrales de l'émission, décalées en fréquence de l'intervalle d'espacement des modes $\Delta\nu_q$. On appelle synchronisation active une synchronisation en mode réalisée par une modulation forcée extérieure des paramètres de la cavité. On utilise pour cela différents procédés de modulations d'amplitude et de phase, de modulation de la longueur de la cavité et du coefficient d'amplification du milieu actif. Dans le cas où la synchronisation s'effectue à l'aide d'absorbeurs saturables (filtres blanchissables) placés dans la cavité du laser, on dit que la synchronisation est passive.

La théorie de la synchronisation passive est assez compliquée, mais on peut la décrire qualitativement de deux façons équivalentes. Supposons que l'on dispose à l'intérieur d'une cavité une substance absorbante à deux niveaux d'énergie et dont la fréquence de résonance est égale à la fréquence d'émission laser. Supposons encore que sa raie d'absorption uniformément élargie est caractérisée par une section d'absorption σ et un temps de relaxa-

tion τ_{rel}. Si l'absorption initiale du filtre introduit dans la cavité n'est pas trop grande, l'émission peut se produire. Le champ de l'émission laser détermine la saturation d'absorption du filtre. Dans le cas d'une émission à modes multiples, l'absorption saturée du filtre est déterminée par le champ d'émission total et, conformément aux formules (3.29) et (3.30) donnant la dépendance non linéaire (quadratique) de l'absorption en fonction du champ, contient des termes qui dépendent de la fréquence des battements intermodes, à condition que la période de ces battements soit supérieure au temps de relaxation ($T > \tau_{rel}$). La transmission du filtre est donc modulée à la fréquence des battements intermodes et c'est ce qui détermine la synchronisation en mode.

Le deuxième procédé de description de la synchronisation passive se fonde sur le concept de train d'impulsions de période de répétition T que l'on considère comme une seule impulsion de durée petite devant T qui effectue un grand nombre de trajets aller et retour entre les miroirs de la cavité. Supposons que le filtre blanchissable soit disposé près de l'un des miroirs. Lorsqu'une impulsion lumineuse qui s'est formée par hasard et qui ne s'est pas encore comprimée à la limite du possible parvient jusqu'au milieu absorbant, ce dernier absorbe l'énergie contenue dans le front avant de l'impulsion et subit un blanchissement. L'impulsion ainsi raccourcie traverse l'absorbant blanchi, se réfléchit et rebrousse chemin. Si $T > \tau_{rel}$ à la seconde arrivée jusqu'à l'absorbant, l'impulsion interagit avec un filtre qui n'est déjà plus saturé et subit donc un nouveau raccourcissement, et ainsi de suite. Il faut tenir compte aussi de l'amplification que subit l'impulsion à chaque trajet séparant les actes de raccourcissement de l'impulsion dans l'absorbeur. Ce processus de raccourcissement progressif de l'impulsion se poursuit dans le cas idéal jusqu'à ce que τ soit limité par la quantité $1/\Delta\nu$.

Ainsi, dans le cas d'une synchronisation des modes, les filtres blanchissables se comportent en modulateurs d'amplitude qui accordent automatiquement la fréquence de modulation à la période des battements intermodes.

On notera que le caractère aléatoire du processus d'établissement d'une synchronisation passive des modes est aisément mis en évidence lorsque l'on cherche à réaliser cette méthode dans des expériences.

Lorsque la synchronisation passive est assurée non par des absorbants saturables ou des milieux non linéaires spécialement introduits dans le résonateur du laser mais par les propriétés non linéaires du milieu actif du laser, on utilise le terme d'autoverrouillage. La différence entre l'autoverrouillage et la synchronisation passive est au fond conventionnelle.

Notons pour conclure qu'il est possible d'assurer la synchronisation des modes transversaux : cette synchronisation conduit à un balayage spatial périodique dans les limites de l'angle solide défini par les directions d'émis-

sion des modes transversaux que l'on synchronise. La fréquence de ce balayage correspond à la fréquence des battements intermodes et la dimension angulaire du rayon assurant le balayage correspond à la largeur d'un mode.

La méthode de synchronisation des modes longitudinaux est souvent rattachée à la technique de déclenchement de Q qui permet de générer des impulsions géantes. Etant essentiellement différente de la synchronisation en modes, cette technique utilise certains de ses procédés. La méthode de commutation de Q a été conçue pour contrôler le comportement dans le temps des lasers à l'état solide travaillant en régime d'impulsion. Ces lasers seront décrits ultérieurement, mais l'idée du procédé en question est la suivante. Supposons que les propriétés du milieu actif permettent d'assurer le pompage à un taux Λ. Dans ces conditions la puissance d'émission continue du laser devrait être égale à $P_{\text{éc}} = h\nu\Lambda$. Rapportée à la durée de vie τ_v du niveau supérieur du laser, cette puissance correspond à une énergie $W = h\nu\Lambda\tau_v = P_{\text{éc}}\tau_v$.

Supposons maintenant que, le pompage étant assuré, les conditions de génération ne le sont pas pour la raison que les miroirs du résonateur ont été éliminés en les recouvrant, par exemple, d'un filtre absorbant. Dans ces conditions l'énergie de pompage qui s'accumule sur le niveau supérieur ne peut être émise puisque ce niveau ne peut se dépeupler par radiation. Or la durée de vie τ_v du niveau étant finie, l'énergie qui s'y accumule ne peut être supérieure à W. Supposons maintenant que l'on découvre très rapidement les miroirs du résonateur en enlevant les filtres absorbants, ce qui équivaut à déclencher très rapidement le Q de résonateur (résonateur à déclenchement par miroir). Si à cet instant et grâce à l'énergie accumulée les conditions d'auto-amorçage sont largement satisfaites, toute cette énergie sera émise sous forme d'une impulsion géante. Si la durée de l'impulsion est τ_{imp}, les estimations donnent pour valeur de la puissance de crête

$$P_{\text{imp}} = W/2\tau_{\text{imp}} = P_{\text{éc}}\tau_v/2\tau_{\text{imp}}. \qquad (11.12)$$

Pendant l'émission de l'impulsion le niveau supérieur se vide. La figure 11.5 illustre la succession des événements qui se produisent lorsque l'on déclenche brusquement le Q du résonateur à l'instant t_0.

La méthode de déclenchement de Q convient lorsque la durée de vie τ_v du niveau supérieur est grande, et c'est alors que l'on peut produire des impulsions géantes.

Avant d'aborder une analyse plus poussée, quoique approximative, de cette méthode, on notera que les termes tels que « déclenchement de Q », « émission pulsée par déclenchement de Q », « régime d'émission par déclenchement de Q » ont été introduits lorsque cette méthode commença à être appliquée en commutant le Q du résonateur, par exemple, en faisant tourner l'un de ses miroirs.

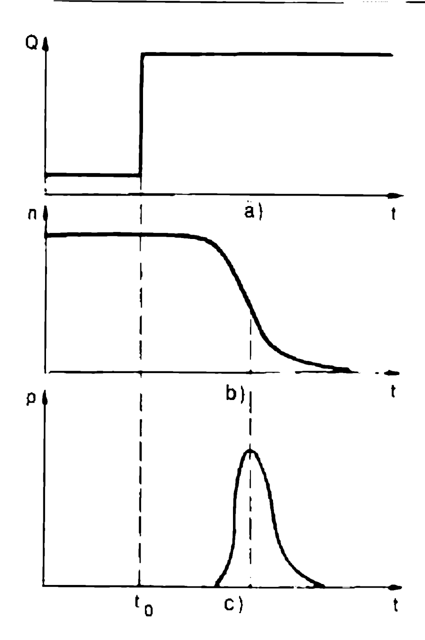


Fig. 11.5. Déclenchement de Q : *a*) variation de Q ; *b*) variation de l'inversion de population ; *c*) variation de la puissance d'émission (en unités arbitraires).

Considérons un laser dont l'émission est assurée par déclenchement instantané de Q ; on négligera la relaxation des populations et l'action du pompage pendant l'émission d'une impulsion géante.

Notons τ_{ph} la durée de vie des photons dans un résonateur à déclenchement de Q. Rappelons que selon la formule (7.17) cette durée de vie est liée au Q du résonateur par la relation simple $Q = \omega\tau_{ph}$. Puisque $1/\tau_{ph}$ représente le taux de sortie des photons du résonateur, l'équation d'évolution du nombre Φ de photons peut s'écrire comme suit:

$$\frac{d\Phi}{dt} = \Phi\left(\alpha c - \frac{1}{\tau_{ph}}\right), \tag{11.13}$$

où c est la vitesse de la lumière et α le facteur d'amplification du milieu actif. En introduisant la notation $\alpha_{seuil} = 1/c\tau_{ph}$ pour la valeur de seuil du facteur d'amplification et en remarquant que l'amplification est proportionnelle à l'inversion n, on peut récrire l'équation (11.13) sous la forme

$$\frac{d\Phi}{dt} = \left(\frac{n}{n_{seuil}} - 1\right)\frac{\Phi}{\tau_{ph}}. \tag{11.14}$$

Ici $n/n_{seuil} = \alpha/\alpha_{seuil}$, $\Phi n/n_{seuil}\tau_{ph}$ représente le taux de croissance du nombre de photons dans le résonateur, Φ/τ_{ph} est le taux de décroissance du nombre de photons dans le résonateur. La croissance du nombre de photons prédomine sur la décroissance de ce nombre lorsque $n > n_{seuil}$. Comme cha-

que émission d'un photon diminue l'inversion de deux unités, le taux de décroissance de l'inversion est proportionnel au taux de croissance du nombre de photons, avec un coefficient de proportionnalité égal à 2 :

$$\frac{dn}{dt} = -2 \frac{n\Phi}{n_{seuil}\tau_{ph}} . \tag{11.15}$$

La résolution simultanée des équations non linéaires (11.14) et (11.15) s'effectue aisément par le calcul numérique, mais on arrive à tirer certaines conclusions qualitatives sur la base des solutions analytiques réalisables. En divisant (11.14) par (11.15), on obtient l'équation

$$\frac{d\Phi}{dn} = \frac{1}{2}\left(\frac{n_{seuil}}{n} - 1\right), \tag{11.16}$$

dont la solution est connue :

$$\Phi = \Phi_0 + \frac{1}{2}\left[n_{seuil} \ln \frac{n}{n_0} - (n - n_0)\right], \tag{11.17}$$

où Φ_0 et n_0 désignent respectivement le nombre de photons et l'inversion à l'instant initial, i.e. à l'instant où l'on déclenche le Q. Comme il est tout naturel de poser que $\Phi_0 \ll \Phi$, on peut écrire

$$\Phi = \frac{1}{2}\left[n_{seuil} \ln \frac{n}{n_{seuil}} - (n - n_0)\right]. \tag{11.18}$$

Or nous ne connaissons pas la solution de l'équation (11.14), i.e. la forme de $\Phi(t)$. Il est cependant évident que pour $t \gg \tau_{ph}$ le nombre de photons $\Phi \to 0$, sans que l'inversion des populations devienne nulle ; cette dernière prend une valeur finie stable n_f que l'on détermine à partir de (11.18) pour $\Phi = 0$, en résolvant l'équation transcendante

$$\frac{n_f}{n_0} = \exp \frac{n_f - n_0}{n_{seuil}} . \tag{11.19}$$

Cette dernière équation permet de calculer la partie utile de l'énergie emmagasinée dans l'inversion des populations :

$$\eta = \frac{n_0 - n_f}{n_0} = 1 - \frac{n_f}{n_0} = 1 - \exp \frac{n_f - n_0}{n_{seuil}} . \tag{11.20}$$

Ce résultat confirme l'idée intuitivement évidente que lorsque l'inversion initiale est supérieure à sa valeur de seuil ($n_0/n_{seuil} \to \infty$), toute l'énergie emmagasinée dans le système inversé est utilisée pour l'émission : $\eta \to 1$.

La puissance de l'émission du laser est liée par la relation évidente

$$P = \Phi h\nu/\tau_{ph} \tag{11.21}$$

au nombre Φ de photons contenus dans le résonateur et à la durée de vie τ_{ph} des photons. On déduit de (11.21) et (11.18) la relation

$$P = \frac{h\nu}{2\tau_{ph}} \left[n_{seuil} \ln \frac{n}{n_0} - (n - n_0) \right], \tag{11.22}$$

où l'inversion n dépend du temps : $n = n(t)$. Si l'on connaissait la forme de la fonction $n(t)$, la relation (11.22) fournirait la forme de l'impulsion émise. Les solutions numériques des équations (11.14) et (11.15) montrent que lorsque la valeur initiale de l'inversion est beaucoup plus grande que sa valeur de seuil ($n_0 \gg n_{seuil}$), le temps de montée de l'impulsion est inférieur à la durée de vie τ_{ph} des photons dans le résonateur, tandis que le temps de descente de l'impulsion est comparable à τ_{ph}.

La puissance de pointe d'une impulsion géante (impulsion résultant de la modulation ou du déclenchement brusque de Q du résonateur) se laisse déterminer à l'aide de la formule (11.22). Il découle de la condition $dP/dn = 0$ que la valeur maximale de la puissance émise pendant la durée de l'émission de l'impulsion géante (11.22) s'obtient pour $n = n_{seuil}$:

$$P_{max} = \frac{h\nu}{2\tau_{ph}} \left[n_{seuil} \ln \frac{n_{seuil}}{n_0} - (n_{seuil} - n_0) \right], \tag{11.23}$$

et lorsque l'inversion initiale est beaucoup plus grande que sa valeur de seuil,

$$P_{max} \approx n_0 \frac{h\nu}{2\tau_{ph}} . \tag{11.24}$$

Etant donné que l'inversion initiale n_0 correspond au produit du taux de pompage du niveau supérieur par la durée de vie de celui-ci ($n_0 = \Lambda\tau_v$), on voit que l'estimation (11.12) concorde avec la formule plus rigoureuse (11.24) en admettant toutefois que la durée de l'impulsion géante est approximativement égale à la durée de vie des photons dans le résonateur.

Pour la réalisation pratique du régime de déclenchement de Q on utilise des obturateurs mécaniques et électro-optiques ou des obturateurs à filtres blanchissables. Dans ce dernier cas la section efficace d'absorption par résonance de la substance du filtre doit être plus grande que la section efficace d'amplification par résonance de la substance active : $\sigma_{fil} \gg \sigma_{amp}$, sinon pratiquement toute l'énergie emmagasinée dans la substance sera utilisée pour le blanchissement stationnaire du filtre. D'autre part, afin que le déclenchement de Q soit suffisamment rapide, le temps de relaxation du filtre doit être beaucoup plus court que la durée de vie de l'inversion : $\tau_{fil} \ll \tau_v$ (voir leçon 3).

Pour conclure, examinons un effet intéressant lié à l'élargissement de la raie d'amplification par effet Doppler qui se manifeste le plus nettement dans les lasers à gaz à mode unique. Nous savons déjà que le rayonnement

n'interagit qu'avec les particules qui sont en résonance avec l'onde électromagnétique, autrement dit avec des particules ayant des fréquences contenues dans les limites d'une raie spectrale à élargissement homogène. En conséquence, dans le cas d'un élargissement par effet Doppler (donc inhomogène) la part des particules en état d'interaction avec le champ dépend du rapport de la largeur homogène à la largeur inhomogène (voir leçon 2). Autrement dit, dans le cas d'une onde progressive plane $E \cos(\omega t - \mathbf{kr})$ n'entrent en interaction avec celle-ci que les particules dont la fréquence de résonance $\omega = \omega_0 + \mathbf{kv}$ est contenue dans les limites de l'intervalle spectral de largeur homogène $\Delta\omega$:

$$| \omega_0 - \omega + \mathbf{kv} | \leqslant \Delta\omega/2, \tag{11.25}$$

où $\mathbf{k}$ est le vecteur d'onde et $\mathbf{v}$ la vitesse de la particule.

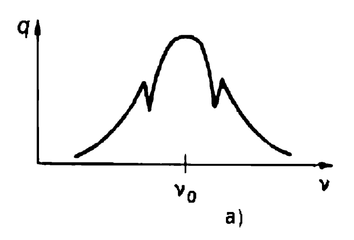
Le fait que les particules animées d'une vitesse déterminée sont excitées en premier lieu entraîne, dans le cas d'un champ fort, une modification de leur distribution selon les vitesses. La distribution des vitesses qui en résulte est telle que le niveau inférieur comporte un creux et le niveau supérieur, un pic. Ces particularités de la distribution apparaissent pour des particules dont les vitesses dépendent de la fréquence du champ conformément à la définition de l'effet Doppler, i.e.

$$v = \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} c. \tag{11.26}$$

La profondeur du creux et la hauteur du pic dépendent de la saturation de la transition correspondante, tandis que leur largeur est égale à la largeur homogène de la raie, compte tenu de son élargissement par un champ fort.

Dans de nombreux lasers à gaz la largeur homogène de la raie d'amplification est notablement plus petite que celle de la raie à élargissement par effet Doppler. Une onde lumineuse d'intensité suffisante pour porter l'amplification à saturation, qui est l'effet non linéaire requis pour faire fonctionner un laser en générateur, fait apparaître sur le profil de Doppler de la raie d'amplification un creux à la fréquence du champ (trou de Bennet). L'onde lumineuse stationnaire se trouvant dans le résonateur du laser résulte de la superposition de deux ondes de même fréquence se propageant en sens inverses. Chacune de ces ondes fait apparaître un trou de Bennet ; si le trou que fait apparaître l'une des ondes progressives correspond aux particules ayant les vitesses (11.26), l'autre onde ayant la même fréquence que la première et se propageant à l'encontre de celle-ci affecte les particules animées des vitesses données par

$$v = - \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} c. \tag{11.27}$$



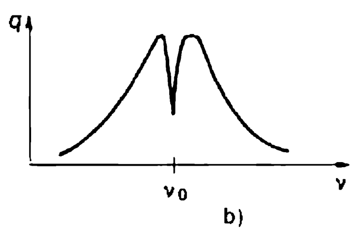


Fig. 11.6. Trous apparaissant sur le profil d'une raie d'amplification élargie par effet Doppler : *a*) $\nu \neq \nu_0$; *b*) $\nu = \nu_0$.

Par conséquent, sur la courbe de distribution des vitesses apparaissent deux crevasses symétriques auxquelles correspondent deux trous de Bennet sur le profil de la raie élargie par effet Doppler (fig. 11.6). Lorsque l'on accorde le laser sur le centre du profil de Doppler, les deux trous se superposent et la puissance d'émission au centre de la raie d'amplification élargie par effet Doppler diminue fortement par effet de résonance. Cet effet a été dénommé Lamb-dip et on l'utilise pour stabiliser la fréquence des émissions laser.

Douzième leçon. HISTOIRE DU DÉVELOPPEMENT DE L'ÉLECTRONIQUE QUANTIQUE. FORMULES FONDAMENTALES

Historique de l'élaboration de l'électronique quantique. Nature quantique de la lumière, émission stimulée, bosons. Rôle d'Einstein et de Dirac. Le premier maser, radiotechnique et optique. La radiospectroscopie. Townes, Prokhorov, Bassov. La méthode des trois niveaux d'énergie. L'idée de l'utilisation des résonateurs ouverts. Les premiers lasers. Place qu'occupe l'électronique quantique en optique. Formules fondamentales de l'électronique quantique.

Il résulte de ce qui précède que la réalisation des dispositifs de l'électronique quantique se ramène à trouver des milieux actifs et à assurer une réaction convenable dans une cavité résonnante adéquate. Le milieu actif et la cavité sont les éléments essentiels de la majorité des dispositifs de l'électronique quantique puisque ce sont les éléments qui constituent essentiellement tout générateur laser. La condition *sine qua non* est la réalisation d'une inversion de population. On peut dire que pour créer un laser ou un maser il faut obtenir une inversion de population. Dans ce qui suit on indiquera comment on réalise une inversion de population dans différents systèmes laser. Compte tenu du rapide développement de l'électronique quantique, on se contentera de décrire les procédés les plus usités.

Après l'exposé des fondements de l'électronique quantique il convient d'en donner l'historique.

L'électronique quantique se fonde sur trois propositions. Selon la première, l'énergie des rayonnements électromagnétiques est discrète, les por-

tions d'énergie élémentaires étant les quanta de lumière ou photons. Ce caractère discret de l'énergie des rayonnements électromagnétiques se manifeste avant tout lors de leurs interactions avec les substances donnant lieu à une absorption ou à une émission de photons. Selon la seconde proposition, toute émission de photons de grande intensité est liée à l'effet d'émission stimulée. Les quanta du rayonnement stimulant et du rayonnement stimulé sont identiques et la probabilité d'émission est proportionnelle à l'intensité de l'émission. La troisième proposition affirme que les quanta des rayonnements électromagnétiques sont régis par la statistique de Bose-Einstein. En conséquence le nombre de quanta revenant à chaque oscillateur de champ est illimité. Lorsqu'un grand nombre de quanta, qui sont indiscernables, vient occuper un oscillateur de champ (un mode), apparaît une onde électromagnétique classique mais cohérente.

Ces propositions, énoncées par A. Einstein, ont jeté les bases de l'électronique quantique. C'est en 1905, 50 ans avant l'apparition de l'électronique quantique, qu'Einstein déduisit, d'une analyse statistique des fluctuations de l'énergie du rayonnement d'équilibre, l'hypothèse des quanta de lumière qu'il appliqua aussitôt à l'interprétation de l'effet photoélectrique. En justifiant l'existence de la frontière rouge de l'effet photoélectrique, Einstein justifia la nature quantique des rayonnements électromagnétiques. En 1916, Einstein réussit à retrouver la formule de Planck en se fondant sur les postulats de Bohr, qui étaient déjà bien connus à l'époque. Cela contribua grandement à élucider la nature des rayonnements d'équilibre des systèmes quantiques, i.e. des systèmes présentant des niveaux d'énergie discrets. En ce qui nous concerne, cette démonstration de la formule de Planck est remarquable par le fait qu'Einstein y introduisit la notion de l'émission stimulée, postula son existence et etablit ses propriétés sur la base de considérations très générales de thermodynamique. Les résultats obtenus par Einstein, que nous connaissons déjà, peuvent être brièvement reformulés de la façon suivante.

L'émission stimulée de rayonnements est postulée comme étant un effet dont les actes élémentaires ont une probabilité qui est proportionnelle à la densité de l'énergie des rayonnements tombant sur la particule qui émet le rayonnement. La fréquence du rayonnement émis est rigoureusement la même que celle du rayonnement stimulant et la directivité de l'émission stimulée coïncide avec celle du rayonnement stimulant. Les processus d'émission et d'absorption stimulées d'un rayonnement sont équiprobables, à la multiplicité de dégénérescence des niveaux correspondants près. Un peu plus tard Einstein tint compte de la polarisation du rayonnement et, se fondant une nouvelle fois sur la thermodynamique, il s'arrêta au seuil de l'énoncé de la parfaite identité des quanta des rayonnements stimulant et stimulé.

Ainsi la nature quantique des rayonnements électromagnétiques et la quantification des niveaux d'énergie des microparticules impliquent l'existence de processus par principe indispensables pour la génération de quanta identiques.

En 1924, S. Bose et A. Einstein, en cherchant à perfectionner la méthode d'établissement de la formule de Plank fondée sur l'hypothèse des quanta de lumière, parvinrent à donner une description thermodynamique généralisée d'un système de particules caractérisées par des fonctions d'onde symétriques. Ils élaborèrent ainsi ce que l'on appelle la statistique de Bose-Einstein. La propriété essentielle des particules identiques satisfaisant à cette statistique est leur parfaite indiscernabilité. Les quanta des rayonnements électromagnétiques, que l'on appelle bosons, sont régis par cette statistique. C'est pour cela que les quanta de l'émission stimulée, caractérisés par la même fréquence, la même polarisation, la même direction de propagation et ayant la même phase, sont indiscernables. L'état du champ de rayonnement tout entier est déterminé par le nombre de quanta revenant à un oscillateur du champ. Ce nombre peut être infiniment grand. En électronique quantique, le caractère bosonique des photons permet de passer de la conception corpusculaire à la conception ondulatoire, cette dernière admettant le principe de la superposition des vibrations, y compris les vibrations cohérentes.

C'est en 1927 que P. Dirac formula une théorie quantique conséquente de l'absorption et de l'émission de la lumière. Dirac justifia les lois statistiques du rayonnement d'Einstein et ayant calculé la probabilité de l'émission, il établit une relation entre les coefficients phénoménologiques d'Enstein et les caractéristiques de l'atome rayonnant. Le principal résultat de la théorie quantique de l'émission de Dirac consiste en une justification rigoureuse de l'existence de l'émission stimulée qui fut postulée par Einstein et de ce que cette émission est cohérente, conformément aux vues intuitives d'Einstein.

Par conséquent, en 1927 toutes les prémisses physiques nécessaires à la constitution de l'électronique quantique étaient rassemblées. Néanmoins, ce n'est que fin 1954-début 1955 que furent énoncées les bases théoriques réelles de l'électronique quantique et que fut créé le premier dispositif — un générateur moléculaire ou laser à l'ammoniac.

L'électronique quantique se constitua dès qu'un système quantique à population inversée fut placé dans une cavité résonnante. Cela eut lieu simultanément vers la fin de 1954 à l'Institut de Physique de l'Académie des Sciences de l'U.R.S.S., dans le laboratoire des vibrations dirigé par A. Prokhorov, et aux U.S.A., à l'Université de Columbia, dans le laboratoire des radiations dirigé par Ch. Townes.

L'important écart dans le temps entre l'élaboration des prémisses requi-

ses pour créer l'électronique quantique et sa création effective montre que la notion physique de l'émission stimulée ne pouvait être assitôt utilisée pour la réalisation d'une nouvelle source de rayonnement.

Le fait que le premier dispositif de l'électronique quantique fut créé pour les besoins de la radiotechnique n'est nullement fortuit. C'est avec un générateur moléculaire que l'on observa pour la première fois une émission entièrement stimulée sur une longueur d'onde de 1,25 cm et ce dans un régime d'auto-oscillations avec réaction.

La raison de cet état de choses tient à ce que pour pouvoir observer une émission stimulée, il faut d'abord disposer d'atomes excités et ensuite il faut que la probabilité de l'émission stimulée soit supérieure à celle de l'émission spontanée. Les conditions expérimentales de la spectroscopie optique usuelle ne pouvaient assurer ces desideratas.

Le caractère non monochromatique des rayonnements optiques, le fait que l'émission spontanée prédominait largement sur l'émission stimulée et qu'en optique les chercheurs ne disposaient pas des méthodes et des conceptions bien développées en radiotechnique, tout cela fut la cause de ce que les masers précédèrent les lasers, quoique les possibilités de créer ces derniers existassent depuis 50 ans.

Il convient de remarquer que vers 1940 les chercheurs en optique avaient déjà la certitude qu'un système d'atomes excités était susceptible d'amplifier le rayonnement optique. Parmi ces chercheurs on doit citer en tout premier lieu V. Fabrikant. Mais personne n'eut l'idée que cela pouvait conduire à la création d'un générateur de rayonnement optique. Quoique Einstein et Dirac, dans leurs travaux sur l'émission stimulée, aient eu en vue l'optique, cette idée était impensable.

Durant la première moitié du XXe siècle, la radiotechnique et l'optique se développèrent indépendamment l'une de l'autre en suivant des voies différentes. En optique on cultivait les conceptions quantiques et en radiotechnique, les conceptions ondulatoires. On ne manquait pas de souligner en ce temps-là que du point de vue ondulatoire l'optique et la radiotechnique ne faisaient qu'un. La radiotechnique puisait les conceptions ondulatoires développées en optique, progressait sur cette base et enrichissait en retour l'optique.

Pendant longtemps la nature quantique des rayonnements électromagnétiques, qui est commune à la radiotechnique et à l'optique, ne se manifestait pas. Il fallut attendre pour cela l'apparition de la radiospectroscopie, qui est la branche de la spectroscopie consacrée à l'étude des bandes UHF des spectres des molécules, des atomes et des ions. La radiospectroscopie commença à se développer très rapidement après la Seconde guerre mondiale grâce aux progrès réalisés en technique des ondes centimétriques pour les besoins de la technique RADAR. C'est pour satisfaire à ces besoins que

furent élaborés des générateurs fiables de rayonnement UHF monochromatique, les méthodes de canalisation de l'énergie UHF à l'aide de guides d'onde, les cavités résonnantes de grand Q, les récepteurs UHF de grande sensibilité. Toutes ces novations avantagèrent grandement la radiospectroscopie.

L'intérêt de la radiospectroscopie réside non pas tant dans l'extension des recherches spectroscopiques dans la gamme des plus grandes longueurs d'onde que dans le fait qu'elle utilisait, à la différence de la spectroscopie optique de l'époque, des rayonnements monochromatiques. En outre, l'émission spontanée est beaucoup plus faible ($\infty \nu^3$) dans la gamme des ondes radio et la population des niveaux excités est fort importante ; ce sont ces particularités qui incitaient à l'étude de l'émission stimulée.

C'est pour cela que la radiospectroscopie servit de base pour les recherches en électronique quantique.

En U.R.S.S., les recherches en radiospectroscopie ont été lancées par A. Prokhorov au laboratoire des vibrations de l'Institut de Physique de l'Académie des Sciences de l'U.R.S.S.

Parallèlement aux recherches purement spectroscopiques, on entama des recherches concernant l'utilisation des spectres UHF pour créer des étalons de fréquence et de temps. C'est à partir de ces recherches que fut élaborée l'électronique quantique.

En effet la précision d'un étalon de fréquence mettant à profit la stabilité de la fréquence d'une certaine raie spectrale d'absorption dépend de la largeur de celle-ci. Plus la raie est fine, meilleure est la correspondance entre la fréquence stabilisée et la fréquence nominale de la raie d'absorption. Dans les gaz moléculaires sous faible pression on observe dans la gamme radioélectrique un élargissement des raies par effet Doppler. Pour obtenir des raies fines on devra utiliser des jets moléculaires sans dispersion des vitesses des molécules. L'inconvénient est que l'intensité des raies d'absorption des jets moléculaires est petite vu que dans le cas d'un faisceau bien collimaté où le nombre de particules est petit, la différence entre les nombres de molécules excitées et non excitées est petite.

Lorsque les chercheurs en arrivèrent là, il apparut que l'on pouvait améliorer grandement la sensibilité en faisant varier, par un artifice, le rapport entre le nombre de molécules excitées et le nombre de molécules non excitées. Si après avoir trié les molécules on n'utilise dans le jet moléculaire que des molécules excitées, l'absorption change de signe et se transforme donc en émission. Ce jet moléculaire devient un milieu caractérisé par des pertes négatives. Les spécialistes de la théorie des vibrations ont aussitôt compris qu'en combinant ces jets avec un circuit de résonance, on pourrait créer un générateur de vibrations monochromatiques. La théorie des vibrations s'était déjà dotée d'une théorie des générateurs de vibrations mono-

chromatiques, i.e. de systèmes auto-oscillants à réaction, tandis que la technique UHF disposait de cavités résonnantes convenant au travail avec les jets moléculaires.

En faisant passer un jet de molécules à population inversée à travers une cavité résonnante, on réalisa la conjonction de ces différentes potentialités et l'on créa le premier maser (N. Bassov et A. Prokhorov en U.R.S.S., et Gordon, Townes et Zeiger aux U.S.A.). En 1964, un prix Nobel de physique a été attribué à Bassov, Prokhorov et Townes pour leurs travaux en électronique quantique qui aboutirent à l'élaboration des masers et des lasers.

Un nouveau progrès fut réalisé en 1955 lorsque Bassov et Prokhorov eurent imaginé une méthode radiative de production de l'inversion, dite méthode de pompage à trois niveaux, qui trouva par la suite de nombreuses applications. Cette méthode sera décrite dans d'autres leçons. En 1956, N. Bloembergen (U.S.A.) suggéra d'utiliser la méthode des trois niveaux pour élaborer des masers-amplificateurs à cristaux paramagnétiques, ce qui permit d'étendre le domaine des applications de l'électronique quantique.

Les réalisations de l'électronique quantique dans la gamme radioélectrique incitèrent les chercheurs à progresser vers les ondes de plus en plus courtes.

A mesure que diminuait la longueur d'onde, la question de la cavité résonnante, sans laquelle il ne peut y avoir de générateur de rayonnement monochromatique, devenait de plus en plus compliquée.

Le problème fut résolu par A. Prokhorov (1958) qui suggéra d'utiliser les résonateurs dits ouverts. On sait qu'il s'agit en fait de l'interféromètre de Fabry-Pérot, mais c'est l'approche radiotechnique qui permit de l'utiliser en qualité de résonateur.

La première réalisation de l'électronique quantique dans le domaine optique fut l'élaboration, fin 1960, de générateurs de vibrations optiques monochromatiques, i.e. des premiers lasers à rubis (T. Maïman) et à néon-hélium (A. Javan). La préhistoire de l'électronique quantique était terminée et ce fut l'époque du développement intense de cette nouvelle branche scientifique et technique.

De nos jours le domaine d'application de l'électronique quantique est immense. Quoiqu'elle se constituât en électronique UHF, c'est en optique qu'elle introduisit les plus grandes novations. Bien que le principe de fonctionnement des masers et des lasers soit le même, l'apparition de ces dispositifs joua des rôles très différents. En radiotechnique la création des masers ne signifia que l'apparition de dispositifs fondés sur un nouveau principe de fonctionnement mais possédant des propriétés usuelles pour l'électronique classique. Bien entendu, la mise en pratique des masers a permis d'améliorer notablement les caractéristiques des appareils radio. La sensibilité des

amplificateurs s'est accrue de 2 à 3 ordres de grandeur et la stabilité de la fréquence du générateur a augmenté de 3 à 4 ordres. Quoique ce soit là des résultats remarquables, ce n'est qu'une amélioration quantitative de caractéristiques qualitatives connues, puisque avant l'apparition de l'électronique quantique la radiotechnique disposait des amplificateurs cohérents et des générateurs de vibrations monochromatiques.

La situation était complètement différente en optique. A la différence de l'électronique classique, toutes les sources de lumière sont quantiques par nature. Remarquons à ce propos que le terme « générateur quantique de vibrations lumineuses », que l'on utilise trop souvent, n'est pas du tout approprié, à notre sens. La notion des quanta apparut à la suite d'une analyse poussée des propriétés des rayonnements optiques, mais avant qu'apparut l'électronique quantique, toutes les sources lumineuses émettaient des vibrations incohérentes et non monochromatiques. L'optique ne disposait ni d'amplificateurs cohérents ni de générateurs de vibrations électromagnétiques monochromatiques. A la différence des sources lumineuses usuelles, les lasers émettent des ondes lumineuses de haute directivité spatiale, spectralement monochromatiques et temporellement cohérentes. C'est pour cela que l'apparition des lasers a mis à la disposition de l'optique la possibilité, inexistante jusqu'alors, de concentrer l'énergie des rayonnements dans l'espace, dans le temps et dans un intervalle spectral défini. L'optique connut alors des progrès qualitatifs qui permirent des domaines d'application qui jusqu'alors lui étaient fermés. Ces nouvelles applications résultent de ce que la mise en œuvre des procédés de l'électronique quantique a permis de générer la lumière par la méthode de l'émission stimulée.

Notons une nouvelle fois que l'électronique quantique ouvre à l'optique de nouvelles potentialités, non seulement n'affecte pas ses fondements, mais utilise les principales propositions de l'optique du XXe siècle. L'élaboration, l'avènement et le développement de l'électronique quantique renforcèrent ces propositions et élargirent leur domaine d'application.

En fait l'électronique quantique constitue non pas une discipline définie, mais une méthode d'élaboration de dispositifs permettant soit d'exercer une action intense sur les substances à l'aide d'un rayonnement monochromatique concentré, soit de transmettre un important volume d'information à l'aide d'un rayonnement monochromatique. L'électronique quantique ne se réduit donc pas aux seuls lasers, quoique leur perfectionnement et leur accession à de nouvelles gammes de longueurs d'onde créent la base de l'électronique quantique.

La production des rayonnements laser s'accompagne d'importantes pertes d'énergie. Le rendement des lasers est faible, mais les propriétés de l'émission laser qui découlent directement de celles de l'émission stimulée permettent de concevoir des applications qui compensent largement les pertes d'énergie.

Actuellement les lasers couvrent une gamme spectrale extrêmement étendue, depuis les ondes submillimétriques jusqu'à l'ultraviolet, et émettent en régime continu et en régime pulsé. Il existe un grand nombre de types de lasers se distinguant par la nature du milieu actif et par des effets physiques utilisés pour les exciter.

Dans un cours des fondements de l'électronique quantique il est superflu de donner des descriptions ou même une énumération de tous les lasers connus. Dans la seconde partie de notre cours nous donnerons une description des lasers les plus représentatifs de ce type de dispositifs et nous étudierons les méthodes les plus utilisées pour réaliser l'inversion de population. Notons une nouvelle fois que toutes les méthodes pouvant être utilisées pour réaliser une inversion de population impliquent une dépense d'énergie pour créer dans le fluide moteur du laser un état thermodynamiquement hors d'équilibre dans lequel l'émission stimulée prédomine sur l'absorption.

* * *

Pour conclure nous donnons ci-après, pour référence, une liste des principales formules établies dans la première partie de ce cours.

Probabilité des transitions stimulées :

$$W_{12}^{\text{stim}} = B_{12}\varrho_\nu, \tag{1.2}$$

$$W_{21}^{\text{stim}} = B_{21}\varrho_\nu. \tag{1.3}$$

Probabilité d'une transition spontanée :

$$W_{21}^{\text{spon}} = A_{21}. \tag{1.6}$$

Relation entre les coefficients d'Einstein :

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21}. \tag{1.10}$$

$$A_{21} = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}\, h\nu B_{21}. \tag{1.11}$$

Largeur naturelle d'une raie :

$$\Delta\nu_0 = A_{21}/2\pi. \tag{2.2}$$

Largeur collisionnelle d'une raie :

$$\Delta\nu_{\text{col}} = 1/2\pi\tau_{\text{col}}. \tag{2.31}$$

Forme de Lorentz d'une raie de largeur $\Delta\nu_{\text{L}}$:

$$q(\nu) = \frac{1}{2\pi}\,\frac{\Delta\nu_{\text{L}}}{(\nu - \nu_0)^2 + \Delta\nu_{\text{L}}^2/4}\,. \tag{2.7}$$

Probabilité d'une transition stimulée donnant lieu à une émission monochromatique de densité volumique ϱ d'énergie avec élargissement homogène de la raie :

$$W_{21} = 2B_{21}\varrho/\pi\Delta\nu_L. \tag{2.20}$$

Forme gaussienne d'une raie élargie par effet Doppler :

$$q(\nu) = \frac{1}{\Delta\nu_T\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{(\nu-\nu_0)^2}{\Delta\nu_T^2}\right]. \tag{2.26}$$

Largeur d'une raie élargie par effet Doppler :

$$\Delta\nu_D = \Delta\nu_T 2\sqrt{\ln 2} = 2\nu_0\sqrt{\frac{2kT}{mc^2}\ln 2} \tag{2.28}$$

Condition d'inversion :

$$n_2/g_2 > n_1/g_1. \tag{3.2}$$

Condition de saturation :

$$n_2/g_2 - n_1/g_1 = 0. \tag{3.15}$$

Facteur d'amplification (d'absorption) :

$$\alpha = \left(\frac{n_2}{g_2} - \frac{n_1}{g_1}\right)\frac{g_1 2B_{12}h\nu}{c\pi\Delta\nu_L}, \tag{3.5}$$

$$\alpha = n\sigma. \tag{3.13}$$

Section d'amplification (d'absorption) :

$$\sigma = \frac{g_2}{g_1}\frac{\lambda^2}{2\pi}\frac{1}{2\pi\Delta\nu_L\tau_0} = h\nu\frac{2B_{12}}{c\pi\Delta\nu_L}. \tag{3.14}$$

Intensité de saturation en régime continu :

$$I_S = h\nu/2\sigma\tau. \tag{3.28}$$

Saturation de gain dans le cas d'un élargissement homogène de la raie et d'un régime continu :

$$z = \frac{z_0}{1 + (g_1 + g_2)I/2g_2 I_S}. \tag{3.30}$$

Densité de l'énergie de saturation dans le cas d'un régime pulsatoire :

$$F_S = I_S\tau = h\nu/2\sigma. \tag{3.43}$$

Forte saturation de gain dans le cas d'un élargissement homogène et d'un régime pulsatoire :

$$z = z_0 \exp\left[-\frac{g_1 + g_2}{2g_2}\frac{F_{imp}}{F_S}\right]. \tag{3.45}$$

9—7100

Relation entre le coefficient d'Einstein B_{12} et l'élément matriciel de l'opérateur d'interaction $\langle \mu \rangle$:

$$B_{12} = \frac{8\pi}{3} \frac{\langle \mu \rangle^2}{\hbar^2}. \tag{4.25}$$

Fréquence de Rabi :

$$\Omega_R = \left\langle \frac{\mu E}{\hbar} \right\rangle. \tag{4.49}$$

Bande passante d'un amplificateur à ondes progressives :

$$\Delta \nu = \Delta \nu_L (\ln 2)^{1/2} (\ln G_0 + \ln L - \ln 2)^{-1/2}. \tag{5.5}$$

Densité spectrale minimale des bruits à l'entrée d'un amplificateur à ondes progressives rapportée à un mode :

$$P_{\text{ent}}^{\text{eff}} = h\nu. \tag{5.16}$$

Intensité maximale à la sortie d'un amplificateur à ondes progressives travaillant en régime continu :

$$I_{\max} = \frac{\alpha_0}{\beta} I_S. \tag{5.26}$$

Densité d'énergie maximale à la sortie d'un amplificateur à ondes progressives travaillant en régime pulsatoire :

$$F_{\max} = \frac{\alpha_0}{\beta} F_S. \tag{5.30}$$

Facteur de mérite d'un résonateur ouvert :

$$Q = \frac{2\pi l}{\lambda} \frac{1}{1 - R}. \tag{6.2}$$

Le gain de puissance d'un amplificateur à cavité résonnante à transmission :

$$G = \frac{(1 - R)^2 K}{1 - 2RK \cos(4\pi l/\lambda) + R^2 K^2} \tag{6.7}$$

Condition d'auto-excitation :

$$RK = 1. \tag{6.9}$$

Fréquence d'émission sur mode unique :

$$\omega = \frac{\omega_r \Delta\omega_L / \ln K + \omega_L \Delta\omega_r}{\Delta\omega_L / \ln K + \Delta\omega_r}. \tag{6.33}$$

Intensité maximale à la sortie d'un générateur travaillant en régime continu :

$$I_{\text{sort}}^{\max} = \frac{\alpha_0}{\beta} I_S. \qquad (6.44)$$

Intensité maximale à la sortie d'un générateur relativement court :

$$I_{\text{sort}}^{\max} = \alpha_0 l(1 - \sqrt{\beta/\alpha_0})^2 I_S. \qquad (6.46)$$

Valeur optimale de la transmittance du miroir de sortie :

$$T = 2\alpha_0 l(\sqrt{\beta/\alpha_0} - \beta/\alpha_0). \qquad (6.47)$$

Maximum de la puissance d'émission en régime continu par unité de volume avec un taux d'inversion $\Lambda[\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-3}]$:

$$P_1 = \Lambda h\nu. \qquad (6.57)$$

Energie maximale de l'émission des impulsions par unité de volume pour une inversion de N particules $[\text{cm}^{-3}]$:

$$E_{\text{ém}} = Nh\nu/2. \qquad (6.58)$$

Nombre de Fresnel :

$$N_F = a^2/l\lambda. \qquad (7.12)$$

Relation entre le facteur de mérite Q d'un mode et la durée de vie du photon dans ce mode :

$$Q = \omega\tau. \qquad (7.17)$$

Condition que doit vérifier un résonateur confocal :

$$2l = R_1 + R_2.$$

Fréquences propres d'un résonateur confocal pour le mode TEM_{mnq} :

$$4l/\lambda = 2q + (1 + m + n). \qquad (8.3)$$

Distribution transversale du mode fondamental TEM_{00q} d'un résonateur confocal :

$$S(x, y) = \exp[-(x^2 + y^2)/2w^2]. \qquad (8.1)$$

Largeur de la distribution de l'intensité du mode TEM_{00q} :

$$w^2 = w_0^2 + (z/kw_0)^2 \qquad (8.4)$$

Rayon de la striction de la caustique :

$$w_0 = \sqrt{l/2k}. \qquad (8.5)$$

Rayon de la tache sur le miroir :

$$w = w_0\sqrt{2}.$$

Rayon de courbure du front d'onde d'un faisceau gaussien :

$$R = z + (k\omega_0^2)^2/z. \tag{8.10}$$

Divergence angulaire des faisceaux gaussiens :

$$\theta = w/z = 1/kw_0, \quad \Omega = \lambda/l. \tag{8.11}$$

Focalisation d'un faisceau gaussien :

$$v_0 = w_0F/z, \quad x = -F. \qquad (8.16),\ (8.17)$$

Conditions de focalisation d'un faisceau gaussien :

$$z \gg l/2, \quad z \gg F > D. \tag{8.19}$$

Limites de la région de stabilité des cavités ouvertes à deux miroirs sphériques ($g_1 = 1 - l/R_1$, $g_2 = 1 - l/R_2$) :

$$g_1g_2 = 1, \quad g_1g_2 = 0. \qquad (9.20),\ (9.21)$$

Distance entre les miroirs d'une cavité télescopique instable (condition pour qu'elle soit confocale) :

$$2l = R_1 - R_2.$$

Coefficient d'agrandissement d'une cavité télescopique instable :

$$M = R_1/R_2. \tag{10.17}$$

Pertes d'émission par passage dans une cavité télescopique :

$$A = (R_1^2 - R_2^2)/R_1^2. \tag{10.18}$$

Fréquence des battements intermodes des modes longitudinaux :

$$\Delta\nu_q = c/2l. \tag{10.21}$$

Enveloppe du champ de l'onde lumineuse résultant de la synchronisation de N modes longitudinaux de même amplitude E_0 :

$$A(t) = E_0 \frac{\sin \frac{N}{2}(\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q)}{\sin \frac{\Delta\omega_q t + \Delta\varphi_q}{2}}. \tag{11.9}$$

Période de répétition des impulsions à mode synchronisé :

$$T = 1/\Delta\nu_q = 2l/c. \tag{11.10}$$

Durée d'une impulsion de N modes synchronisés :

$$\tau = T/N. \tag{11.11}$$

Puissance de crête d'une impulsion géante lorsque l'inversion initiale est de beaucoup supérieure à la valeur de seuil et lorsque le Q est déclenché instantanément :

$$P_{\max} = n_0 \frac{h\nu}{2\tau_{\mathrm{ph}}} \tag{11.24}$$

DEUXIÈME PARTIE

LES LASERS

Treizième leçon. LES LASERS À GAZ. LE LASER À HÉLIUM-NÉON

Particularités du milieu actif gazeux. Principales méthodes d'excitation. Décharge électrique, dynamique des gaz, excitation chimique, photodissociation, pompage optique. Transfert par résonance de l'énergie d'excitation lors des chocs. Laser à hélium-néon. Schéma des niveaux d'énergie. Transfert de l'énergie d'excitation. Concurrence entre les raies d'émission de longueurs d'onde 3,39 et 0,63 μm. Paramètres de la décharge, paramètres d'un laser.

On procédera à l'étude des méthodes d'inversion de population en considérant des lasers présentant le plus d'intérêt, en commençant par les lasers à gaz. Le fait que le milieu actif est gazeux implique plusieurs conséquences remarquables. Notons tout d'abord que seuls les milieux gazeux peuvent être transparents dans un large intervalle spectral s'étendant depuis l'ultraviolet extrême jusqu'à la limite entre l'infrarouge et les ondes UHF radioélectriques. Les lasers à gaz sont utilisables dans une gamme de longueurs d'onde extrêmement étendue, correspondant à une variation des fréquences correspondantes dépassant trois ordres de grandeur.

D'autre part, comparés aux corps solides et liquides, les gaz ont des masses volumiques notablement plus petites mais présentent une homogénéité plus grande. En conséquence, la distorsion et la diffusion des rayons lumineux par les gaz étant plus petites, il est plus facile d'atteindre la limite de diffraction dans la divergence des émissions lasers.

La masse volumique des gaz étant petite, l'élargissement des raies spectrales par effet Doppler est petit devant la largeur des raies de luminescence des milieux condensés. Il est donc plus facile d'obtenir une haute monochromaticité de l'émission des lasers à gaz. Pour ces différentes raisons c'est l'émission des lasers à gaz qui présente les traits les plus distinctifs de l'émission laser, à savoir une haute monochromaticité et une grande directivité.

Les particules gazeuses interagissent au cours des chocs, mais comme cette interaction est relativement faible, elle n'affecte pratiquement pas la configuration des niveaux d'énergie des particules et ne donne lieu qu'à un élargissement des raies correspondantes. A basse pression l'élargissement collisionnel est petit et ne dépasse pas l'élargissement Doppler. Lorsque la pression du gaz augmente, l'élargissement collisionnel croît (voir

leçon 2), ce qui permet de contrôler la largeur de la raie d'amplification du milieu actif du laser, chose qui n'est réalisable que dans le cas des lasers à gaz.

Nous savons que pour que les conditions d'auto-excitation soient réalisées, il faut que le gain dans le milieu actif par passage à travers le résonateur du laser soit supérieur aux pertes. Etant donné que dans le milieu actif gazeux il n'y a pas de pertes d'énergie hors-résonance, cette condition se trouve satisfaite plus aisément que dans les milieux actifs condensés. Il est pratiquement très difficile de fabriquer des miroirs ayant des pertes notablement inférieures à 1 % ; il s'ensuit que le gain par passage doit être supérieur à 1 %. Comme il est relativement facile d'arriver à ce résultat dans les gaz, par exemple en augmentant la longueur du milieu actif, le nombre des lasers à gaz émettant sur différentes longueurs d'onde est considérable. Mais la faible masse volumique des gaz ne permet pas d'obtenir une densité de particules excitées aussi grande que dans les corps solides. De ce fait l'énergie de sortie massique des lasers à gaz est notablement plus faible que celle des lasers à milieux actifs condensés.

Les particularités des gaz se manifestent dans un grand nombre de processus physiques utilisés pour assurer l'inversion de population. Parmi ces processus notons l'excitation collisionnelle dans les décharges électriques, l'excitation dans les processus gazodynamiques, l'excitation chimique, la photodissociation, le pompage optique (surtout par laser), l'excitation par faisceau électronique.

Dans la grande majorité des lasers à gaz l'inversion de population est assurée par la décharge électrique (lasers à décharge électrique). La méthode de la décharge gazeuse est la méthode la plus générale d'inversion de population dans les lasers à gaz, étant donné que les électrons apparaissant dans la décharge excitent facilement les particules gazeuses en les soumettant à des chocs inélastiques sous l'action desquels les particules gazeuses passent sur des niveaux de plus grandes énergies. La luminescence de la décharge gazeuse que l'on observe usuellement (lampes luminescentes) est attribuée aux transitions spontanées depuis les niveaux excités sur les niveaux inférieurs. Si les taux de ces processus spontanés de désactivation des états excités permettent une accumulation de particules sur un niveau d'énergie supérieur aux dépens d'un certain niveau inférieur, on obtient une inversion de population sur ces niveaux. Comme les électrons excitent les gaz dans une large gamme d'énergies, les électrons créés dans les décharges gazeuses déterminent une inversion de population sur les niveaux d'énergie des atomes et des molécules neutres ou des ions.

La méthode de la décharge gazeuse peut être utilisée pour exciter les lasers fonctionnant en régimes continu et pulsatoire. L'excitation par impulsions est utilisée lorsque la dynamique de peuplement des niveaux du haut

et du bas est peu propice au régime continu, ainsi que lorsque l'on cherche à obtenir une grande puissance d'émission, irréalisable en régime continu.

La décharge électrique dans les gaz peut être autonome ou semi-autonome. Dans ce dernier cas la conductibilité du gaz est entretenue par un agent ionisant extérieur et le processus d'excitation est assuré indépendamment des conditions de claquage du gaz pour la valeur optimale de l'intensité du champ électrique dans l'espace de décharge. Dans un milieu gazeux ionisé par une action extérieure ce champ et le courant auquel il donne naissance définissent l'énergie d'excitation apparaissant dans la décharge.

Une des particularités des gaz réside en ce qu'il est possible de produire l'écoulement de masses gazeuses dont les paramètres thermodynamiques varient fortement. Ainsi lorsqu'un gaz chaud fortement comprimé se détend brusquement, par exemple, en s'écoulant à une vitesse supersonique à travers une tuyère, sa température tombe. A cette nouvelle température notablement plus basse correspond une nouvelle distribution d'équilibre des populations sur différents niveaux énergétiques des particules gazeuses. Lorsque la température du gaz tombe brusquement, l'état d'équilibre de cette distribution est momentanément perturbé, et si le processus de relaxation vers le nouvel équilibre thermodynamique évolue plus rapidement pour le niveau inférieur que pour le niveau supérieur, l'écoulement gazodynamique s'accompagne d'une inversion de population existant dans une région étendue du gaz dans le sens de son écoulement. L'étendue de cette région dépend de la vitesse de l'écoulement gazodynamique et du temps de relaxation de l'inversion d'occupation.

C'est le principe de la méthode gazodynamique d'inversion de population où l'énergie thermique du gaz chaud est transformée directement en énergie d'un rayonnement électromagnétique monochromatique. Une particularité importante de cette méthode réside en la possibilité de produire des écoulements gazodynamiques d'importantes masses de substance active gazeuse et d'obtenir une importante puissance de sortie (cf. formule (6.57)).

Dans la méthode d'excitation chimique l'inversion d'occupation résulte de réactions chimiques donnant naissance à des atomes, à des molécules ou à des radicaux excités. Le milieu gazeux convient bien à l'excitation chimique parce que les réactifs se mélangent et se déplacent rapidement. C'est dans des réactions chimiques en phase gazeuse que la distribution hors d'équilibre de l'énergie chimique entre les produits de la réaction se manifeste le plus nettement et subsiste le plus longtemps. L'intérêt des lasers chimiques réside en ce qu'ils permettent de transformer directement l'énergie chimique en énergie radiante. La mise en œuvre des réactions en chaîne a permis de réduire la part d'énergie consommée pour faire démarrer les réactions qui assurent l'inversion de population. En conséquence la con-

sommation d'énergie durant le fonctionnement d'un laser chimique peut être fort petite, ce qui est un avantage incontestable des lasers chimiques. Notons encore que l'évacuation des produits de la réaction par écoulement des gaz permet d'assurer une émission continue. Il est possible de combiner les méthodes d'excitation chimique et gazodynamique.

A côté des lasers chimiques on trouve les lasers où l'inversion de population est assurée à l'aide de réactions de photodissociation. En général ce sont des réactions qui évoluent rapidement et qu'on amorce à l'aide d'une impulsion lumineuse puissante ou d'une explosion. La dissociation donne naissance à des atomes et à des radicaux excités. L'évolution explosive de la réaction détermine le régime pulsatoire de ces lasers. Etant donné que dans des conditions d'amorçage convenables la photodissociation se produit simultanément dans un volume gazeux important, la puissance de l'impulsion et l'énergie de l'émission peuvent atteindre de grandes valeurs.

Une méthode d'inversion aussi répandue que le pompage optique prend un caractère très particulier lorsqu'on l'applique aux lasers à gaz. Les gaz ayant une petite masse volumique, leurs raies d'absorption à la résonance sont fines et le pompage optique n'est efficace que si la source de pompage est largement monochromatique. Généralement on utilise pour cela les sources à lasers. Le comportement spécifique des gaz vis-à-vis du pompage optique se manifeste aussi en ce que par suite de leurs faibles masses volumiques la profondeur de pénétration du rayonnement de pompage dans les gaz est grande, tandis que le dégagement de chaleur résultant de l'absorption du rayonnement est petit. En général le pompage optique par transfert d'énergie à un milieu gazeux n'affecte pratiquement pas son homogénéité.

Dans le cas de l'excitation des milieux gazeux par faisceau électronique les gaz sont ionisés par les électrons de grande énergie (0,3 à 3 MeV). L'énergie des électrons rapides du faisceau primaire, dont le nombre est relativement petit, se transforme progressivement en énergie d'un grand nombre d'électrons lents. Ce sont justement ces électrons de faible énergie (plusieurs eV ou plusieurs dizaines d'électrons-volts) qui excitent les niveaux lasers supérieurs. Comme la longueur de libre parcours des électrons de grande énergie est grande dans les gaz, la méthode de pompage par faisceau électronique convient bien à l'excitation de grands volumes de gaz sous pression élevée et ce qu'elles que soient leurs compositions.

Le pompage par faisceau électronique est une méthode d'excitation souple, de grande énergie, utilisable pratiquement dans tous les cas. Un autre avantage de cette méthode est qu'on peut la combiner avec les autres procédés de création de milieux gazeux actifs pour lasers.

Avant de passer à la description des procédés de mise en œuvre de ces différentes méthodes pour le pompage des lasers à gaz les plus importants, il convient de faire deux remarques.

Premièrement, la réalisation d'une inversion de population dans les milieux gazeux se trouve facilitée par le fait que les processus de relaxation y sont relativement lents. En général les constantes de vitesse sont bien connues ou peuvent être déterminées sans trop de difficultés. Du côté des petites longueurs d'onde et pour les transitions bien permises le processus qui s'oppose à la création et à l'existence ultérieure de l'inversion est le dépeuplement spontané du niveau supérieur (voir leçon 2). Les durées de vie radiatives des atomes, des molécules et des ions sont bien connues ou se laissent déterminer. Les valeurs des durées de vie connues pour les particules libres restent valables dans les gaz.

Deuxièmement, il est normal dans les gaz que l'énergie d'excitation des particules d'une sorte soit transférée à des particules de sortes différentes au cours de chocs inélastiques. Ces transferts d'énergie sont d'autant plus effectifs que les niveaux d'énergie des particules entrant en collision sont peu différents. En effet, il existe toujours une différence entre les énergies des états dont les populations sont échangées lors des chocs et de ce fait le transfert d'excitation donne lieu à une libération ou à une absorption d'énergie cinétique E_{cin} :

$$N^* + n \overset{K}{\rightleftarrows} N + n^* + E_{\text{cin}}, \tag{13.1}$$

où N est la densité des donneurs d'énergie d'excitation, n la densité des accepteurs d'énergie, les astérisques désignent les états excités des particules. La lettre K placée au-dessus des fléchettes dans l'équation (13.1) représente la constante de vitesse de la réaction concernée. L'énergie cinétique peut être puisée dans le réservoir d'énergie thermique des mouvements de translation des particules gazeuses (ou elle peut être communiquée à ce réservoir d'énergie). Pour que ce processus de transfert d'énergie soit efficace, l'énergie qui est communiquée au réservoir (ou qui est prélevée au réservoir) lors d'un choc ne doit pas dépasser l'énergie thermique moyenne kT d'une particule. Autrement dit, le déficit d'énergie pour les états considérés doit être petit :

$$| E_{N^*} - E_{n^*} | \ll kT. \tag{13.2}$$

Si cette condition est vérifiée, on a affaire à un transfert d'énergie d'excitation par résonance (quasi-résonance).

En gros le processus de transfert d'énergie (13.1) est décrit par une équation d'évolution de la forme

$$\frac{dn^*}{dt} = - \frac{n^*}{\tau} + K(N^*n - n^*N), \tag{13.3}$$

où τ est un temps de relaxation efficace et où la constante de vitesse K de transfert de l'énergie d'excitation est définie comme toujours par la relation

$$K = \langle \sigma v \rangle. \tag{13.4}$$

Ici v est la vitesse des particules entrant en collision et la section σ du processus de transfert tend vers la section σ_{cg} définie en cinétique des gaz : $\sigma \to \sigma_{cg}$ lorsque la condition (13.2) est vérifiée. Dans le second membre de l'équation (13.3) il a été tenu compte du processus inverse $N + n^* \to N^* + n$. En admettant que N, N^*, n et n^* satisfont à la loi de la conservation du nombre de particules :

$$n + n^* = n_0, \quad N + N^* = N_0, \tag{13.5}$$

on déduit de (13.3) que dans les conditions stationnaires on doit avoir

$$n^* = \frac{KN^*}{1/\tau + KN_0} n_0. \tag{13.6}$$

A condition que

$$KN_0 \gg 1/\tau \tag{13.7}$$

on arrive à exciter le niveau le plus élevé des accepteurs correspondant au niveau excité des donneurs.

Ainsi, le processus collisionnel de transfert de l'énergie d'excitation entre des particules de différentes sortes, qui est caractéristique des milieux gazeux, ne peut être efficace que si la condition (13.2) est vérifiée. Ce processus permet de créer efficacement un milieu actif pour laser composé de particules de la sorte n en excitant des particules de la sorte N dans les conditions (13.7).

Les transferts de l'énergie d'excitation étendent les potentialités d'élaboration de lasers à gaz puisqu'ils permettent de séparer dans le milieu actif des fonctions d'accumulation de l'énergie d'excitation et celle de son émission ultérieure sur une longueur d'onde donnée. Le processus évolue en deux étapes successives. En utilisant un procédé d'excitation adéquat, on excite d'abord les particules du gaz auxiliaire qui se comportent ensuite en donneurs d'énergie d'excitation. Ensuite au cours de chocs inélastiques l'énergie est transférée du gaz donneur aux accepteurs, i.e. aux particules du fluide moteur dont le niveau laser supérieur acquiert ainsi une population. Le niveau supérieur du gaz auxiliaire doit avoir une grande durée de vie propre afin d'accumuler une quantité d'énergie suffisante. Le schéma du processus est représenté sur la figure 13.1.

La méthode qui vient d'être décrite trouve de nombreuses applications, car pratiquement dans tous les procédés d'excitation (par décharge électrique, gazodynamique, chimique, etc.) il est souvent avantageux de communiquer l'énergie d'excitation non pas aux particules dont l'émission est la fin que l'on cherche à obtenir, mais à des particules qui absorbent facilement l'énergie fournie et qui au lieu de l'émettre transfèrent leur excitation aux particules émettrices.

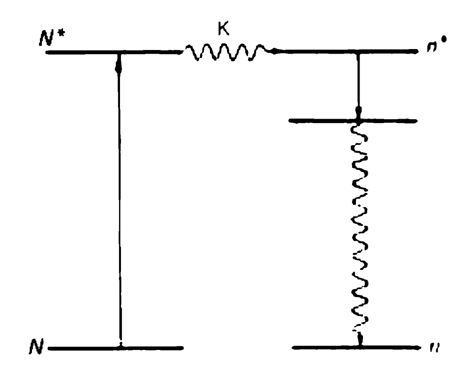


Fig. 13.1. Transfert de l'énergie d'excitation selon le schéma $N^* + n \xrightarrow{K} N + n^*$: la flèche pointant vers le haut symbolise l'excitation des particules N, la flèche pointant vers le bas symbolise l'émission par les particules n^* et la ligne ondulée pointant vers le bas symbolise la relaxation du niveau laser inférieur des particules n. On voit que les particules N^* ne jouissent pas d'une relaxation propre.

Considérons maintenant quelques types de lasers à gaz. Nous commencerons par les systèmes gazeux atomiques dont le représentant le plus typique est le laser à hélium-néon. On sait que ce fut en fait le premier laser à gaz. Les premiers calculs et suggestions concernaient justement les lasers à gaz puisque l'on connaissait déjà assez bien les schémas des niveaux d'énergie des particules gazeuses et des conditions d'excitation des milieux gazeux. Néanmoins le premier laser qui fut réalisé a été le laser à rubis pour la raison que les monocristaux de rubis ont fait l'objet d'études poussées en spectroscopie de résonance paramagnétique électronique et qu'ils ont été largement utilisés en électronique quantique des UHF pour la réalisation d'amplificateurs quantiques paramagnétiques (lasers paramagnétiques). Peu de temps après, à la fin de 1960, A. Javan, W. Bennett et D. Herriott ont créé le laser à hélium-néon émettant sur la longueur d'onde de 1,15 μm. L'intérêt pour les lasers à gaz grandit dès que l'on réalisa l'émission du laser à hélium-néon sur la raie rouge de 632,8 nm, pratiquement dans les mêmes conditions que celles qui assurèrent l'émission sur 1,15 μm. Ce résultat stimula la recherche des applications pratiques des lasers. Le rayon laser devint un instrument de travail.

Grâce aux perfectionnements techniques successifs le laser à hélium-néon cessa d'être une merveille des techniques de laboratoire et se transforma en un dispositif fiable. Ce laser est aujourd'hui bien connu pour ses performances et mérite d'être étudié.

Dans le laser à hélium-néon les atomes actifs sont les atomes neutres de néon. L'excitation est réalisée par une décharge électrique. Un schéma simplifié, et dans une certaine mesure généralisé, des niveaux d'énergie du néon est représenté sur la partie de droite de la figure 13.2. Dans la décharge électrique, sous l'action des chocs avec les électrons sont excités les niveaux E_3, E_4 et E_5. Les niveaux E_4 et E_5 sont métastables et en comparaison de ces niveaux, le niveau E_3 a une durée de vie courte. On s'attendrait donc à ce qu'il soit facile de réaliser l'inversion de population entre les niveaux

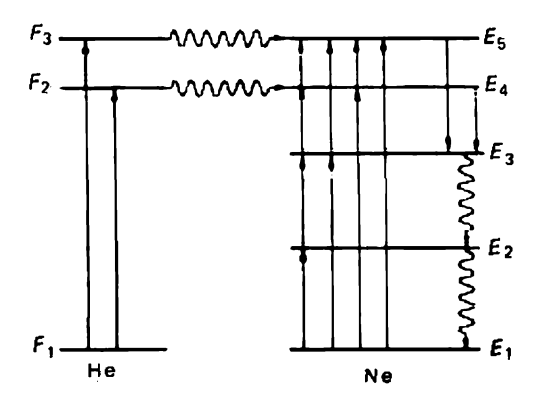


Fig. 13.2. Schéma du processus d'excitation du néon et de l'hélium dans la décharge électrique (les flèches ont la même signification que sur la figure 13.1). On a indiqué la possibilité d'un peuplement en cascade des niveaux d'énergie du néon.

E_4 et E_5 d'une part, et le niveau E_3 d'autre part. Mais l'existence du niveau métastable E_2 s'oppose à cette inversion. On trouve souvent un niveau métastable à grande durée de vie dans les spectres de nombreux atomes, y compris les atomes des gaz nobles. Lors des chocs des atomes avec les électrons le niveau E_2 s'oppose au dépeuplement du niveau E_3 et s'oppose donc à l'inversion de population.

Si l'on utilise du néon pur, il est fort difficile d'obtenir une inversion en régime continu. Cette situation défavorable, qui est assez fréquente, peut être corrigée en introduisant dans la décharge un gaz auxiliaire se comportant en donneur d'excitation. Dans le cas considéré on utilise pour cela l'hélium. Les énergies des deux premiers niveaux F_2 et F_3, qui sont à l'état excité métastable (fig. 13.2), sont très peu différentes des énergies des niveaux E_4 et E_5 du néon. Aussi les conditions de transfert par résonance de l'excitation selon le schéma

$$\mathrm{He}^* + \mathrm{Ne} \rightarrow \mathrm{Ne}^* + \mathrm{He} + E_{\mathrm{cin}}, \qquad (13.8)$$

sont satisfaites. Par un choix adéquat des pressions partielles du néon et de l'hélium la relation (13.7) sera vérifiée et l'on pourra réaliser l'occupation de l'un ou des deux niveaux E_4 et E_5 du néon ; les populations de ces niveaux seront notablement supérieures à celles que l'on pourrait obtenir avec du néon pur, et l'on réalise ainsi une inversion de population de ces niveaux par rapport au niveau E_3.

Le dépeuplement des niveaux inférieurs se produit lors de processus collisionnels, notamment lors des chocs contre les parois du tube à décharge dans le gaz.

Notons que c'est dans le laser à hélium-néon que fut réalisée la méthode de transfert d'énergie d'un gaz, ne participant pas directement à l'émission

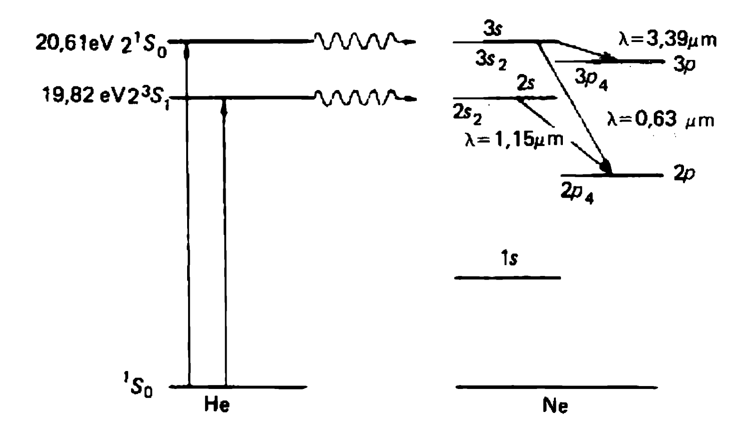


Fig. 13.3. Représentation des niveaux excités inférieurs de l'hélium et du néon : les flèches pointant vers le haut symbolisent l'excitation de l'hélium, les lignes ondulées symbolisent le transfert de l'énergie d'excitation de l'hélium au néon, les flèches obliques symbolisent l'émission des atomes de néon. Les raies de relaxation des niveaux lasers inférieurs du néon ne sont pas indiquées sur la figure.

laser mais se laissant aisément exciter, à un autre gaz qui, ne jouissant pas de la faculté d'accumuler l'énergie d'excitation, convient bien à l'émission.

Examinons de plus près le schéma des niveaux d'énergie des atomes neutres d'hélium et de néon (fig. 13.3).

Aux états excités inférieurs 2^3S_1 et 2^1S_0 de l'atome d'hélium correspondent les énergies 19,82 et 20,61 eV. Les transitions optiques depuis ces états à l'état fondamental $^1S_0$ sont interdites dans l'approximation de la liaison LS qui s'applique bien à l'hélium. Les états 2^3S_1 et 2^1S_0 sont des états métastables ayant une durée de vie de 1 ms environ. De ce fait ils accumulent aisément l'énergie qui est communiquée aux atomes d'hélium pendant leurs chocs avec les électrons.

Dans les atomes de néon on a affaire à la liaison jl. Sur la figure 13.3 on a représenté en traits gras les états correspondant à l'une des configurations et l'on y a indiqué le sous-niveau actif. Pour repérer les niveaux on a utilisé la notation de Paschen qui est la plus usitée dans les publications. Les niveaux $3s_2$ et $2s_2$ ont des énergies proches des énergies des niveaux métastables 2^1S_0 et 2^3S_1 de l'hélium, le déficit d'énergie étant égal à $300\,\text{cm}^{-1}$ environ. (On notera qu'à 300 K, $kT \approx 210\,\text{cm}^{-1}$.) L'état $1s$ possède une grande durée de vie par suite du piégeage résonant de la radiation résultant de sa liaison radiative avec l'état fondamental.

Dans les atomes de néon les états s ont des durées de vie plus grandes que celles des états p. C'est ce qui permet d'obtenir des inversions de population dans les transitions $2s \to 2p$, $3s \to 3p$. On doit remarquer cependant que l'état $1s$ du néon se peuple aisément dans la décharge, et dans le cas de

courants de décharge modérés on peut envisager un peuplement échelonné des niveaux lasers inférieurs résultant des transitions de l'état $1s$ aux états $2p$ et $3p$.

L'introduction dans la décharge d'une quantité d'hélium suffisante pour assurer une voie de peuplement intense des niveaux $2s$ et $3s$ du néon élimine la limitation relative à l'inversion d'occupation en régime continu. Chronologiquement la première émission continue fut réalisée sur la transition $2s \to 2p$. La plus grande part de la puissance émise correspond à la transition $2s_2 \to 2p_4$, $\lambda = 1{,}15$ μm. Plus tard on a réalisé l'inversion des transitions $3s \to 3p$ ($3s_2 \to 3p_4$, $\lambda = 3{,}39$ μm) et $3s \to 2p$ ($3s_2 \to 2p_4$, $\lambda = 0{,}63$ μm).

Ces trois types d'émission ont lieu dans des conditions de décharge sensiblement identiques et présentent les mêmes dépendances de la puissance d'émission avec les paramètres de la décharge. Les émissions sur les longueurs d'onde 3,39 μm et 0,63 μm se font concurrence puisqu'elles correspondent à des transitions depuis le même niveau supérieur. En conséquence l'émission sur l'une de ces longueurs d'onde affecte l'émission sur l'autre longueur d'onde. La situation se complique encore par le fait que les facteurs d'amplification correspondants sont très différents. A la transition $3s_2 \to 3p_4$ (3,39 μm) correspond un gain de 20 dB/m ; en conséquence on arrive à obtenir une émission avec des miroirs ordinaires, métalliques par exemple. La transition $3s_2 \to 2p_4$ (0,63 μm) est beaucoup plus difficile à réaliser, car le gain n'est que de 5 à 6 %/m et il ne peut donc supporter la concurrence avec l'énorme gain de 20 dB/m de l'autre transition. Pour obtenir une émission dans la partie visible du spectre on munit le laser à hélium-néon de miroirs interférentiels multidiélectriques possédant un fort coefficient de réflexion à la longueur d'onde de 0,63 μm. A la transition $2s_2 \to 2p_4$ (1,15 μm) correspond un gain de 10 à 20 %/m et l'émission est assurée par l'emploi de miroirs diélectriques.

Le laser à hélium-néon utilise le pompage par décharge électrique. Les atomes d'hélium (et de néon) sont excités dans la décharge luminescente à courant faible. D'une façon générale, pour créer le milieu actif des lasers à régime continu utilisant des atomes ou des molécules neutres, on utilise surtout le plasma faiblement ionisé de la colonne positive d'une décharge luminescente. La densité de courant de la décharge luminescente est de 100 à 200 mA/cm^2. L'intensité du champ électrique longitudinal est telle que le nombre d'électrons et d'ions apparaissant sur l'unité de longueur de la distance de décharge compense les pertes de particules chargées diffusant vers les parois du tube de décharge. Dans ces conditions la colonne positive de la décharge est stationnaire et homogène. La température électronique est donnée par le produit de la pression p du gaz par le diamètre intérieur D du tube. Lorsque le produit pD est petit, la température électronique est élevée et elle est petite lorsque pD est grand. Les conditions de similitude

des décharges sont liées à la constance de la quantité pD. Lorsque la densité du nombre d'électrons est constante, les conditions et les paramètres de la décharge ne seront constants que si le produit pD est constant. La densité du nombre d'électrons contenus dans le plasma faiblement ionisé de la colonne positive est proportionnelle à la densité de courant.

Dans le cas du laser à hélium-néon la valeur optimale du produit pD ainsi que la composition partielle du mélange gazeux sont quelque peu différentes suivant la longueur d'onde d'émission.

Dans le cas de l'émission sur 0,63 μm, à la raie la plus intense de la série $3s \rightarrow 2p$, celle qui est déterminée par la transition $3s_2 \rightarrow 2p_4$ (0,63282 μm), correspond la valeur optimale de $pD \approx 3{,}5$ à 4,0 torr·mm. Pour cette émission le rapport des pressions partielles de l'hélium et du néon pour lequel la condition (13.7) est le mieux vérifiée est égal à 5 : 1. L'énergie d'excitation est pour l'essentiel transférée de l'état 2^1S_0 de l'hélium à l'état $3s$ du néon, comme indiqué sur la figure 13.3.

Dans la gamme centrée sur 1,15 μm, la raie la plus intense de la série $2s \rightarrow 2p$ est celle qui correspond à $2s_2 \rightarrow 2p_4$ (1,15228 μm). L'énergie d'excitation est fournie par l'état 2^3S_1 de l'hélium (fig. 13.3). La valeur optimale du rapport des pressions partielles de l'hélium et du néon est 10 : 1, et la valeur du produit $pD \approx 10$ à 12 torr·mm.

Dans la gamme de 3,39 μm (série $3s \rightarrow 3p$, raie la plus intense $3s_2 \sim 3p_4$; 3,3913 μm) le niveau laser supérieur coïncide avec le niveau supérieur de la raie rouge de l'émission sur 0,63 μm. Les conditions optimales de décharge sont donc les mêmes dans ces deux cas.

Bien souvent on utilise le même tube de décharge scellé pour faire fonctionner le laser à hélium-néon sur différentes longueurs d'onde en changeant les miroirs ; dans ce cas on adopte des valeurs moyennes des caractéristiques ci-dessus correspondant à des paramètres pouvant varier dans les limites suivantes : diamètre du tube à décharge 5 à 10 mm, rapport des pressions partielles 5 à 15, pression totale 1 à 2 torr, intensité de courant 25 à 50 mA.

L'existence d'un diamètre optimal résulte de la concurrence de deux facteurs. Premièrement, lorsque la section droite du milieu actif du laser augmente, toutes choses restant égales, la puissance de sortie croît. Deuxièmement, lorsque le diamètre du capillaire du tube de décharge diminue, le facteur d'amplification croît proportionnellement à $1/D$. Cela résulte de l'augmentation de la probabilité de dépeuplement de l'état métastable $1s$ du néon sur la paroi du tube capillaire, ainsi que de l'augmentation de la quantité d'hélium excité (la quantité de néon excité augmente donc aussi) ; en conséquence le facteur d'amplification augmente, le produit pD restant constant. Ainsi la condition de similitude des décharges luminescentes dans des tubes de décharge de différents diamètres est vérifiée.

L'existence d'une valeur optimale de la densité du courant de décharge est déterminée par ce qu'avec des courants forts apparaissent des processus en cascade de la forme

$$e + \mathrm{Ne}(1s) \to \mathrm{Ne}(2p) + e, \tag{13.9}$$

qui réduisent l'inversion (cf. fig. 13.2 et 13.3). Les processus de ce type peuvent aussi devenir notables si l'on augmente la pression du néon, ce qui détermine à son tour l'existence d'une pression optimale.

Les valeurs usuelles de la puissance d'émission des lasers à hélium-néon sont de plusieurs dizaines de milliwatts dans les gammes de 0,63 μm et de 1,15 μm, et des centaines de milliwatts dans la gamme de 3,39 μm. La durée d'exploitation des lasers fabriqués correctement n'est limitée que par les processus évoluant du gaz dans la décharge et se chiffre par années. Au cours du temps il se produit des changements de composition du gaz dans la décharge. Par suite de l'adsorption des atomes sur les parois et sur les électrodes, la pression totale tombe et le rapport des pressions partielles change.

Examinons maintenant la question de la construction des cavités résonnantes pour les lasers à hélium-néon. C'est en disposant les miroirs de la cavité résonnante à l'intérieur du tube de décharge que l'on arrive à assurer une meilleure stabilité. L'inconvénient est que les miroirs se détériorent assez rapidement sous l'action de la décharge. Aussi dispose-t-on à l'intérieur de la cavité le tube de décharge muni de fenêtres à angle de Brewster par rapport à l'axe optique. Cette disposition présente de nombreux avantages : alignement aisé des miroirs, plus grande durée d'exploitation du tube de décharge et des miroirs, possibilité de leur remplacement, contrôle de la cavité, emploi de cavités dispersives, sélection des modes, etc.

En électronique quantique on accorde une grande importance à la largeur de la raie correspondant à la transition de fonctionnement (voir leçon 2). Pour les lasers à gaz on doit tenir compte des types suivants d'élargissement des raies : naturel, collisionnel et par effet Doppler. Dans le cas des lasers à hélium-néon la formule (2.8) (où l'on doit entendre par τ_{01} la durée de vie naturelle τ_p de l'état *p du néon et par* τ_{02} le temps τ_s relatif à l'état *s*) donne la valeur de la largeur naturelle de raie $\Delta\nu_0 \approx 20$ MHz. L'élargissement collisionnel (formules (2.31) et (2.32)) dépend de la pression du gaz. Pour les atomes de néon, en admettant que la section efficace du processus de collision est égale à la section gazocinétique, on trouve à une pression de 1 torr environ $\Delta\nu_{col} \approx 1$ MHz. L'élargissement par effet Doppler (formules (2.28) et (2.30)) dépend entre autres de la longueur d'onde de l'émission. Pour la raie de 0,63 μm ces formules donnent à 400 K $\Delta\nu_D = 1500$ MHz, résultat en bon accord avec les données expérimentales. On voit que pour le laser à hélium-néon l'élargissement de la raie d'émission est déterminé surtout par l'effet Doppler. L'élargissement produit est relativement faible

et avec une raie de cette largeur on peut obtenir une émission sur un seul mode longitudinal, i.e. une émission sur une seule fréquence, en utilisant une cavité de faible longueur $l \leqslant 15$ cm (cf. formule (10.21)).

Le laser à hélium-néon est le plus représentatif des lasers à gaz. Son émission présente toutes les caractéristiques de ces lasers, notamment l'existence d'un Lamb-dip (voir leçon 11). La largeur du Lamb-dip est proche de la largeur des raies à élargissement homogène dont l'ensemble constitue la raie à élargissement Doppler inhomogène. Dans le cas du laser à hélium-néon la largeur homogène est la largeur naturelle $\Delta\nu_0$. Puisque $\Delta\nu_0 \ll \Delta\nu_D$, la position du Lamb-dip (voir fig. 11.6) repère de façon très précise la position du centre de la raie de la transition de fonctionnement du laser. La courbe expérimentale du Lamb-dip représentée sur la figure 11.6 est obtenue en modifiant de façon régulière la longueur de la cavité d'un laser monomode. La position du minimum du Lamb-dip permet donc de réaliser une réaction convenable qui, commandant la longueur de la cavité, permet de stabiliser la fréquence d'émission du laser. C'est par ce procédé que l'on a réussi à obtenir une stabilité relative et une reproduction de la fréquence égale à 10^{-9}. On notera qu'une stabilité encore meilleure (10^{-12} à 10^{-13}) peut être obtenue lorsque le trou apparaît non pas sur la raie d'amplification du milieu actif, mais sur la raie d'absorption du gaz assurant le transfert d'énergie de résonance. Pour la raie d'émission $3s_2 \to 3p_4$ (3,39 μm) ce gaz est le méthane.

En remarquant pour conclure qu'il existe de nombreux lasers à gaz à atomes neutres, y compris à atomes de gaz nobles, on notera qu'il existe de nombreux modèles industriels de lasers à hélium-néon.

Quatorzième leçon. LASERS IONIQUES. LASERS À VAPEURS MÉTALLIQUES

Laser à argon. Représentation des niveaux d'énergie. Excitation en deux étapes successives. Dépendance avec la densité du courant de décharge. Condition d'inversion de population. Influence du recyclage du gaz utilisé dans la décharge. Paramètres du laser. Laser à hélium-vapeur de cadmium. Mécanisme d'ionisation et d'excitation de Penning. Représentation des niveaux d'énergie. La cataphorèse. Paramètres du laser. Rendement des lasers à décharge. Transitions autolimitées. Rendement, énergie, puissance des lasers à transitions autolimitées. Laser à vapeur de cuivre, schéma des niveaux, paramètres du laser.

Le laser à hélium-néon, que nous avons décrit précédemment, est un excellent exemple de laser à atomes gazeux neutres. Parmi les lasers à ions de gaz rares on doit citer en premier lieu le laser à argon qui possède la plus grande puissance d'émission continue (jusqu'à plusieurs centaines de watts) dans la partie visible du spectre. Associant d'excellentes caractéristiques de sortie à une disposition favorable des niveaux d'énergie dont l'utili-

sation assure l'émission dans la région bleu-vert du spectre, qui est celle où les récepteurs de rayonnement présentent la plus haute sensibilité, ce laser trouve de nombreux domaines d'application dans la recherche et les techniques. Ces domaines d'application s'étendent depuis l'optique non linéaire en passant par les études de la diffusion de la lumière, les recherches en biologie et en médecine et le diagnostic du plasma jusqu'aux traitements technologiques tels que le réglage des résistors et le rainage des circuits intégrés. Une des principales applications des lasers à argon est le pompage des lasers à colorants, que nous étudierons dans une des leçons suivantes.

Avant de décrire ce laser il convient de remarquer tout d'abord que les lasers utilisant les transitions entre niveaux excités d'ions de gaz rares n'atteignent leurs seuils de génération qu'à des densités de courant fort importantes, qui sont requises pour maintenir un haut degré d'ionisation du gaz. En effet, dans les lasers à ions l'occupation du niveau laser supérieur résulte de deux chocs successifs d'un atome avec les électrons présents dans la décharge. Le premier choc ionise l'atome et le second excite l'ion formé. En conséquence l'inversion est un processus à deux étapes dont les efficacités sont proportionnelles au courant de décharge. L'efficacité totale de l'excitation est au moins proportionnelle au carré du courant de décharge ; pour que l'inversion de population soit notable, la densité du courant de décharge doit donc être élevée. Dans les lasers à argon les densités de courant sont égales à plusieurs centaines d'ampères par cm^2 et aux fortes intensités d'émission elles atteignent des milliers d'ampères par cm^2.

La consommation d'énergie des lasers à ions de gaz rares est fort importante et le rendement est faible, ce qui implique que la dissipation d'énergie y est grande et les tubes à décharge sont donc soumis à des actions thermiques et érosives qui les mettent hors d'usage. Mais ces lasers présentent l'avantage du coût relativement peu élevé des gaz rares qui sont produits à l'état pur et qui ne réagissent ni avec les cathodes ni avec les getters ni avec les parois du tube. Ces gaz ne sont pas toxiques et il ne faut pas les échauffer pour obtenir la densité requise. Les spectres de ces gaz sont d'ailleurs bien connus.

Une représentation simplifiée des niveaux d'énergie du laser à ions argon est donnée sur la figure 14.1. Etant donné que toutes les raies d'émission du laser à argon fonctionnant en régime continu résultent des transitions entre les configurations $4p$ et $4s$, tous les niveaux qui en font partie sont représentés sur la figure 14.1 par une seule raie. On a déjà mentionné que l'excitation des niveaux lasers supérieurs de Ar^+ se réalise en cascade :

$$\mathrm{Ar} + e \to \mathrm{Ar}^+ + 2e, \quad \mathrm{Ar}^+ + e \to (\mathrm{Ar}^+)^* + e. \tag{14.1}$$

Cela signifie que l'excitation des niveaux de la configuration $4p$ se produit à partir de l'état fondamental $3p^5$ de l'ion Ar^+. La figure 14.1 montre en

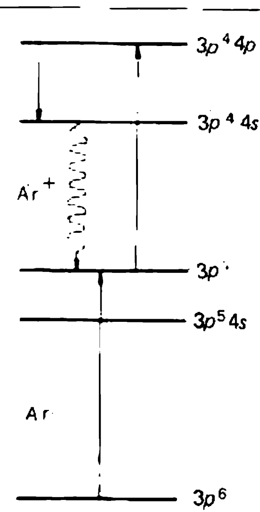


Fig. 14.1. Représentation des niveaux lasers de l'argon : les flèches pointant vers le haut symbolisent l'ionisation et l'excitation, la flèche pointant vers le bas symbolise l'émission et la ligne ondulée, le dépeuplement radiatif du niveau laser inférieur.

effet que l'excitation à partir de l'état fondamental $3p^6$ des atomes Ar exige une énergie plus grande. Le mécanisme (14.1) est d'ailleurs corroboré par la dépendance de l'émission spontanée des niveaux lasers de l'ion Ar^+ avec la densité de courant. Bien entendu, différents autres mécanismes d'excitation sont également possibles, par exemple les transitions radiatives en cascade à partir de niveaux de plus grandes énergies de l'ion Ar^+ ou bien le transfert de l'excitation lors des chocs avec des ions présentant des niveaux métastables ayant une énergie convenable. Néanmoins le processus (14.1) est non seulement le plus simple mais c'est celui qui donne une description approximativement correcte de l'excitation des niveaux lasers supérieurs de la configuration $3p^4 4p$ de l'ion Ar^+. Notons N la densité du nombre de particules occupant ces niveaux, N_i la densité du nombre d'ions se trouvant dans l'état fondamental $3p^5$ et N_e la densité du nombre d'électrons. Globalement le plasma de la décharge est électriquement neutre, i.e. $N_e \approx N_i$. Dans le processus (14.1) le taux de pompage des niveaux lasers supérieurs est

$$\Lambda = dN/dt \propto N_e N_i \approx N_e^2. \quad (14.2)$$

En régime stationnaire de la décharge la densité électronique est proportionnelle à la densité du courant de décharge : $N_e \propto J$. Par suite $\Lambda \propto J^2$. En régime stationnaire le taux de pompage détermine la puissance de l'émission laser (cf. formule (6.57)). Une étude plus poussée de la question, fondée sur ce modèle simple, conduit à la forme suivante de la loi de similitude concernant les lasers à argon :

$$P/V = 10^{-5} J^2, \quad (14.3)$$

où P/V est la densité volumique totale de la puissance de sortie [W/cm³] de l'émission du laser à Ar^+ fonctionnant en régime continu sur tous ses modes et sur toutes les raies de la région bleu-vert du spectre ; J la densité du courant de décharge [A/cm²]. La relation (14.3) est en assez bon accord avec les données expérimentales.

On peut donc admettre qu'au sein du milieu actif du laser à argon il se forme d'abord, à la suite de chocs entre les atomes neutres et les électrons, des atomes neutres excités et des ions à l'état fondamental. Ensuite les chocs entre les ions à l'état fondamental et les électrons fournissent des ions excités. Mais quel que soit le mécanisme envisagé, il s'agit de préciser non seulement comment s'effectue l'occupation du niveau supérieur mais aussi comment se dépeuple le niveau inférieur.

Il a été établi que dans le cas d'ions Ar^+ les niveaux lasers inférieurs $3p^4 4s$ se dépeuplent par émission d'un rayonnement ultraviolet lointain d'une longueur d'onde de 72 nm environ (cf. fig. 14.1). La durée de vie radiative (spontanée) des niveaux inférieurs (10^{-9} s) est beaucoup plus petite que celle des niveaux supérieurs (10^{-8} s). Un tel rapport des temps de relaxation permet de satisfaire à la condition d'inversion (3.2). En effet, les équations d'évolution de la forme (13.3) ou (13.6), (13.7) s'écrivent dans notre cas, en négligeant les transitions stimulées, sous la forme suivante :

$$dn_2/dt = K_2 N_e n - n_2/\tau_2, \tag{14.4}$$

$$dn_1/dt = K_1 N_e n - n_1/\tau_1, \tag{14.5}$$

$$n + n_1 + n_2 = N, \tag{14.6}$$

où (voir fig. 14.1) n_2 est la densité des particules dans la configuration $3p^4 4p$ (niveau laser supérieur), n_1 dans la configuration $3p^4 4s$ (niveau laser inférieur) et n dans la configuration $3p^5$ (état fondamental de l'ion), τ_2 et τ_1 sont les durées de vie correspondantes, N est la densité du nombre total d'ions, N_e la densité des électrons, K_1 et K_2 sont les constantes de vitesse des processus d'excitation respectivement des états $4s$ et $4p$. Dans les conditions stationnaires correspondant au régime continu, $dn_2/dt = dn_1/dt = 0$. L'inversion stationnaire dont dépend le facteur d'amplification des signaux faibles est alors donnée par l'expression

$$n_2 - n_1 = \frac{(K_2\tau_2 - K_1\tau_1)NN_e}{1 + (K_2\tau_2 + K_1\tau_1)N_e} . \tag{14.7}$$

Il est évident que la condition d'inversion de population s'exprime par l'inégalité $K_2\tau_2 > K_1\tau_1$ ou encore lorsque les taux d'excitation par chocs électroniques des niveaux lasers supérieurs et inférieurs ne sont pas très différents, par l'inégalité

$$\tau_2 > \tau_1, \tag{14.8}$$

condition présentant un caractère général.

Il est utile de considérer quelques cas particuliers. Lorsque $K\tau N_e \gg 1$,

$$n_2 - n_1 = \frac{K_2\tau_2 - K_1\tau_1}{K_2\tau_2 + K_1\tau_1} N, \qquad (14.9)$$

ce qui, compte tenu de la relation $N \propto N_e$, est en désaccord avec les résultats expérimentaux (14.3). Dans le cas particulier où $K\tau N_e \ll 1$,

$$n_2 - n_1 = (K_2\tau_2 - K_1\tau_1)NN_e \propto J^2, \qquad (14.10)$$

résultat en bon accord avec l'expérience.

L'inversion réalisée assure l'émission de plus de 10 raies, dont les plus intenses sont la raie verte sur 514,5 nm et la raie bleue sur 488,0 nm. La représentation des niveaux indiquée sur la figure 14.1 permet de se faire une idée du rendement réalisable. Selon cette représentation le rendement est <7 % mais en pratique il est beaucoup plus petit.

La décharge filamenteuse que l'on utilise pour provoquer l'émission des lasers à argon a des propriétés intermédiaires entre la décharge luminescente et l'arc fortement ionisé, étant toutefois plus proche de ce dernier. La décharge se produit à basse pression. La pression optimale du point de vue de l'émission laser est comprise entre 0,25 et 0,5 torr. On a déjà indiqué plusieurs fois que pour maintenir un haut degré d'ionisation et une température électronique élevée il faut que la densité de courant soit grande.

Une particularité essentielle des lasers à argon, ainsi que des lasers à ions des gaz rares en général est que la puissance de sortie croît rapidement avec l'intensité du courant de décharge (cf. formules (14.3) et (14.10)). Cela tient à ce que la saturation du processus d'inversion, donnée par la formule (14.7), peut se situer à des densités du courant de décharge notablement plus grandes que celles que l'on peut pratiquement atteindre.

Les grandes densités de courant imposent d'importantes charges calorifiques aux parois du tube de décharge du laser, qui sont encore soumises à un intense bombardement ionique. La fabrication des tubes de décharge et de ses électrodes pour lasers à argon pose des problèmes de technologie fort ardus. Signalons que les mesures de la largeur des raies élargies par effet Doppler, qui est de 3500 MHz environ, indiquent que la température des ions est égale à 3000 K ; c'est pour cela que les ions érodent les matériaux du tube et des électrodes.

La haute charge calorifique à laquelle est soumis le laser impose son refroidissement par circulation d'eau. Dans ces conditions la conductibilité thermique des parois du tube joue un rôle essentiel. Le meilleur matériau est la céramique en oxyde de béryllium (BeO). On peut également utiliser des assemblages d'anneaux métalliques ou en matériau diélectrique.

Il arrive que par suite de la grande densité de courant les ions Ar^+ s'écoulent de l'anode vers la cathode le long des streamers, ce qui donne

naissance à des gradients de pression longitudinaux et à une extinction de la décharge. Pour éviter l'apparition de cet effet on ménage un canal de dérivation dans le tube de décharge le long duquel s'effectue la recirculation du gaz. Afin que ce canal ne soit le siège d'aucune décharge, sa longueur doit être plus grande et son diamètre plus petit que ceux du tube de décharge.

On utilise surtout les lasers à argon à fonctionnement continu ayant une puissance d'émission totale (sur toutes les raies) de 5 à 15 W. Pour la sélection des raies utiles on utilise des cavités dispersives quoique, à la différence des lasers à hélium-néon, l'effet de compétition des différentes raies émises soit petit ou nul. La plus grande puissance d'émission des lasers à argon fonctionnant en régime continu atteint plusieurs centaines de watts.

Notons pour conclure que dans les mêmes conditions de décharge, il se forme des ions Ar^{++} dont l'émission tombe dans le domaine de l'ultraviolet. En régime continu les raies les plus intenses correspondent à 363,8 et 351,1 nm. La puissance d'émission de ces raies représente quelques watts.

Parmi les lasers ioniques une place notable revient aux lasers à vapeurs métalliques. Le plus répandu est le laser à hélium-cadmium dont le fonctionnement repose sur le transfert collisionnel d'énergie d'excitation des atomes d'hélium métastables dans l'état 2^3S_1 aux atomes de cadmium ; ces derniers s'ionisent et s'excitent (ionisation dite de Penning) selon le schéma

$$\mathrm{He}^* + \mathrm{Cd} \overset{K_P}{\rightarrow} \mathrm{He} + (\mathrm{Cd}^+)^* + e + E_{\mathrm{cin}} \,. \qquad (14.11)$$

La constante de vitesse de cette réaction d'ionisation $K_P = \langle \sigma_P v \rangle$ est déterminée par la section σ_P qui dans le cas considéré ($\sigma_P = 6{,}5 \cdot 10^{-15}$ cm^2) est plus grande que la section usuelle.

Un processus tel que

$$\mathrm{A}^* + \mathrm{B} \rightarrow \mathrm{A} + (\mathrm{B}^+)^* + e \qquad (14.12)$$

n'est réalisable que si l'énergie d'excitation de l'atome A* est plus grande que l'énergie d'ionisation et de l'excitation ultérieure de l'ion B^+. Le processus est particulièrement efficace lorsque l'état excité de A* est métastable.

En gros le processus (14.11) ressemble au processus (13.8) qui a été envisagé dans l'étude du laser à hélium-néon. A la différence de ce dernier, le laser à hélium-cadmium n'exige pas une résonance exacte des états excités de He* et $(Cd^+)^*$, car l'excès d'énergie est évacué par l'électron libéré, ce qui caractérise ce mécanisme d'ionisation.

La dénomination du laser à hélium-cadmium reflète toute l'importance de l'accumulation de l'énergie d'excitation dans les états métastables des atomes d'hélium et du transfert de cette énergie aux atomes de cadmium. Parfois on appelle ce laser laser à cadmium.

La représentation des niveaux d'énergie du laser à hélium-cadmium

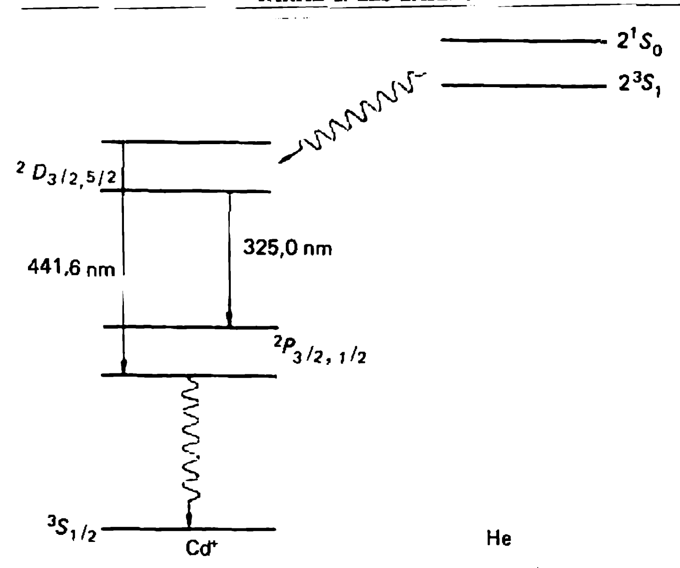


Fig. 14.2. Représentation des niveaux actifs du laser à hélium-cadmium : la ligne ondulée pointant vers le bas symbolise le dépeuplement radiatif du niveau laser inférieur, la ligne ondulée oblique symbolise le transfert de l'énergie d'excitation de l'hélium au cadmium.

donnée sur la figure 14.2 est assez simple. Elle correspond à l'existence d'un électron périphérique et d'une enveloppe électronique complète sous-jacente. Les états métastables 2^1S_0 et 2^3S_1 de l'hélium, qui sont excités dans la décharge, peuvent exciter les états $^2D_{3/2}$, $^2D_{5/2}$, $^2P_{3/2}$, $^2P_{1/2}$ de l'ion Cd^+. Quoique dans le processus de Penning la résonance importe peu, le transfert de l'excitation se produit le plus efficacement dans le processus présentant la moindre différence d'énergie entre les états, i.e. de l'état 2^3S_1 à l'état $^2D_{3/2,5/2}$. Néanmoins l'inversion de population apparaît et subsiste en régime continu conformément à la formule (14.8), et ce pour la raison que les niveaux inférieurs (P) se dépeuplent beaucoup plus rapidement que les niveaux supérieurs (D). La durée de vie radiative des états D est de 10^{-7} s environ et celle des états P de 10^{-9} s. Le piégeage de l'émission résultant de la transition entre le niveau laser inférieur et l'état fondamental de l'ion ne se produit pas en raison de la faible concentration des ions Cd^+.

En ce qui concerne le mécanisme d'excitation des niveaux lasers supérieurs, le laser à hélium-cadmium ressemble au laser à hélium-néon, tandis que d'après le mécanisme de dépeuplement des niveaux lasers inférieurs il ressemble au laser à argon. La comparaison des représentations des niveaux d'énergie de ces trois lasers (cf. fig. 13.3, 14.1 et 14.2) permet de poursuivre la comparaison des lasers à gaz considérés à fonctionnement continu. Les raies d'émission du laser à hélium-cadmium de 325,0 et 441,6 nm correspondent à des transitions depuis des niveaux de départ dif-

férents. C'est pour cela que dans ce laser on n'observe pas la compétition qui existe entre les raies d'émission de 3,39 et 0,63 μm du laser à hélium-néon. Comme le processus de Penning de formation et d'excitation des ions cadmium s'effectue en une seule étape, le taux de pompage du milieu actif du laser à vapeur de cadmium est proportionnel à la densité du courant de décharge et non pas à son carré comme dans le laser à argon ; en conséquence, la densité de courant et la puissance dissipée par unité de longueur du tube du laser à cadmium sont notablement plus petites.

L'intérêt que l'on accorde aux lasers à hélium-cadmium tient à ce que ce sont des lasers fiables, à faible seuil d'excitation émettant en régime continu dans les parties bleue (441,6 nm) et ultraviolette (325,0 nm) du spectre. Pour obtenir une puissance d'émission de plusieurs dizaines de milliwatts, il faut disposer d'une source d'alimentation de plusieurs centaines de watts sans que le laser soit refroidi par circulation d'eau, ce qui facilite son utilisation dans les expériences de physique. En ce qui concerne ses potentialités d'application, on citera surtout celles qui sont déterminées par la faible longueur d'onde de son émission. En premier lieu c'est la photochimie au laser et les études de différents types de diffusion moléculaire de la lumière (Raman, Rayleigh, Mandelstam-Brillouin) dont l'intensité est proportionnelle à $1/\lambda^4$. On doit noter aussi la haute monochromaticité de l'émission de ce laser. Le faible seuil d'excitation fait que le milieu actif ne subit jamais de surchauffe importante, de sorte que l'élargissement Doppler de la raie d'émission est égal à 1-1,5 GHz. En conséquence, on discerne facilement dans le spectre d'émission l'éclatement isotopique des raies du cadmium. Si l'on n'utilise qu'un seul isotope ^{114}Cd, on obtient une raie d'émission très fine. Il est par conséquent facile de faire fonctionner ce laser en régime monomode et monofréquence.

On a décelé de nombreuses transitions lasers dans les vapeurs métalliques, mais les difficultés liées à une distribution uniforme des vapeurs métalliques dans la décharge rendent ardue la réalisation des lasers. Dans le cas du cadmium, cette difficulté peut être surmontée à l'aide de la cataphorèse. On appelle cataphorèse le déplacement ordonné des ions dans la décharge gazeuse en courant continu sous l'action d'un champ électrique extérieur. Dans le cas d'un système biphasé, la cataphorèse favorise le déplacement vers la cathode du constituant ayant le plus petit potentiel d'ionisation. Dans les tubes de grand diamètre la diffusion en sens opposé compense l'effet de la cataphorèse et s'oppose à l'apparition d'importants gradients de concentration. Dans les tubes de petit diamètre utilisés pour les lasers, l'effet de la diffusion est plus faible que celui de la cataphorèse et un important gradient de concentration peut apparaître ; dans ces conditions, ce n'est que sur une petite partie de la décharge que l'on trouvera un mélange gazeux convenant au fonctionnement du laser.

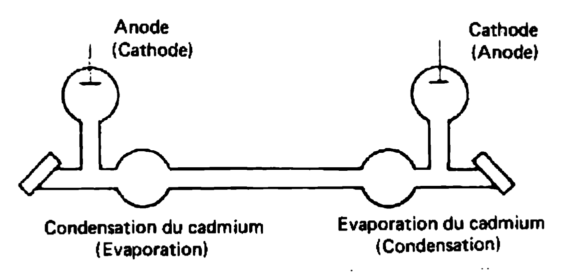


Fig. 14.3. Schéma du tube de décharge du laser à hélium-cadmium.

Cette difficulté a été surmontée en injectant continûment du cadmium dans la décharge du côté de l'anode. La cataphorèse est alors mise à profit pour déplacer à une vitesse contrôlée les ions cadmium depuis l'anode jusqu'à la cathode. Le cadmium s'élimine du mélange gazeux en se condensant sur les parois froides de la partie élargie du tube juste devant la cathode (fig. 14.3). La décharge permet de maintenir le tube à une température suffisamment élevée pour empêcher le cadmium de se condenser sur les parois du tube sans avoir à utiliser un chauffage auxiliaire ou un calorifugeage du tube. La pression d'hélium dans le système doit être assez grande pour s'opposer à la diffusion de la vapeur de cadmium vers les fenêtres qui scellent le tube. On notera que ce procédé est largement mis à profit dans les lasers à gaz pour préserver les éléments optiques des tubes lasers de la condensation des vapeurs chaudes.

Le tube représenté schématiquement sur la figure 14.3 présente généralement les caractéristiques suivantes. Le tube à décharge a une longueur de 1 à 1,5 m, un diamètre de 2 à 2,5 mm ; la pression de l'hélium est égale à plusieurs torrs. On commence par amorcer la décharge luminescente dans l'hélium, ensuite on chauffe à 230—250 °C le creuset contenant le cadmium ; pour un courant de décharge de 100 mA le flux massique du cadmium représente $(1 \text{ à } 1{,}5)\cdot 10^{-3}$ g/h et la pression de la vapeur de cadmium est égale à $(3 \text{ à } 4)\cdot 10^{-3}$ torr. Sous une tension de 4,5 kV et un courant de 0,1 A la quantité d'énergie libérée par unité de longueur du tube à décharge est de 3 W/cm environ, ce qui permet de se contenter d'un refroidissement par air et d'utiliser des tubes en verre ordinaire. Dans ces conditions la puissance de sortie pour une émission à la longueur d'onde de 325,0 nm est de 100 à 200 mW si la transmittance du miroir de sortie représente 5 à 7 %.

La structure représentée sur la figure 14.3 permet, après que tout le cadmium contenu dans le creuset aura été vaporisé, d'intervertir les positions de la cathode et de l'anode et de vaporiser le cadmium condensé dans le creuset précédemment refroidi.

Notons pour conclure les différences qui se manifestent dans les mouve-

ments ordonnés du milieu actif dans les lasers à argon et à hélium-cadmium.

Considérons maintenant la question du rendement des lasers à décharge dans les gaz. Le rendement peut être représenté sous la forme

$$\eta = \eta_p h\nu/E_s, \tag{14.13}$$

où η_p est l'efficacité du pompage, plus exactement pour les lasers à gaz, c'est la part de l'énergie de pompage introduite dans la décharge qui sert à l'excitation du niveau laser supérieur. Notons E_s l'énergie de ce niveau.

Nous savons déjà que l'inversion de population en régime continu implique un dépeuplement rapide du niveau laser inférieur (voir par exemple formule (14.8)). Si l'on n'arrive pas à dépeupler le niveau inférieur par chocs, il ne subsiste que le processus de dépeuplement spontané. Or cela signifie que le niveau inférieur doit se situer haut dans l'échelle des énergies. Dans ce cas le rapport $h\nu/E_s$ que l'on peut considérer comme la valeur limite du rendement de la transition laser est petit. En effet, dans les lasers à atomes ou à ions gazeux à fonctionnement continu, on utilise des niveaux haut placés dans l'échelle des énergies ($E_s \approx$ 10 à 20 eV). Le plus souvent $h\nu/E_s < 0{,}1$. D'autre part, le fait que les niveaux sont haut placés affecte l'efficacité des processus de leur excitation. La part prépondérante de l'énergie introduite dans la décharge d'un gaz atomique est utilisée pour l'ionisation et l'excitation des niveaux de faibles énergies. En conséquence, le rendement de ces lasers ne dépasse pas 10^{-3} à 10^{-4}, comme c'est le cas des lasers que nous venons d'étudier.

Remarquons que lorsqu'on arrive à faire participer à l'émission laser les niveaux vibrationnels de faible énergie des molécules, le rendement devient élevé ; cette question sera discutée lors de l'analyse des lasers à gaz moléculaires.

Le problème du rendement des systèmes atomiques trouve une solution radicale en remplaçant le régime continu par le fonctionnement par impulsions et ce pour la raison suivante. Lorsqu'une décharge électrique s'établit dans un gaz atomique, dans la plupart des cas la majeure partie de l'énergie de décharge est utilisée pour exciter le premier niveau résonant de l'atome. Ce niveau possède la plus grande section d'excitation lors des chocs avec les électrons. Les méthodes de calcul des sections d'excitation par choc électronique des niveaux des atomes à grand nombre d'électrons sont peu développées. Mais on sait que ce sont les niveaux correspondant aux transitions électrodipolaires les plus permises aboutissant à l'état fondamental qui possèdent les plus grandes sections. C'est pour cela que le premier niveau résonant s'excite facilement et que c'est ce niveau qu'il convient d'utiliser en qualité de niveau de départ dans les lasers. Dans un système atomique (atomes neutres ou ions libres) on ne pourra utiliser comme niveau inférieur

qu'un niveau métastable qui se trouve généralement au-dessous du premier niveau résonant. Il s'ensuit qu'une transition interdite est excitée par les électrons plus difficilement qu'une transition permise. En conséquence le processus d'excitation crée une inversion de population qui subsiste quelque temps après que l'excitation a été supprimée. Si l'inversion est assez grande et si le seuil d'auto-excitation du laser est largement dépassé, on voit apparaître une émission qui fait passer les particules du niveau supérieur sur le niveau inférieur, l'inversion et l'émission disparaissant. Lorsque le laser cesse d'émettre, l'inversion ne se rétablit pas instantanément puisque le niveau laser inférieur reste occupé pratiquement pendant toute la durée de sa vie, qui est relativement grande.

Ainsi les conditions d'une inversion stationnaire (14.7) ou (14.8) ne sont pas vérifiées, l'émission se fait par impulsions, la cadence de répétition des impulsions ne peut être supérieure à la quantité inverse de la durée de vie du niveau inférieur.

En conséquence, une émission pulsée utilisant des transitions aboutissant à des niveaux métastables est dite auto-limitée ou émission par transition auto-limitée.

L'étude du fonctionnement d'un laser utilisant des transitions auto-limitées se fonde sur les équations de la forme (14.4) à (14.6) complétées par des termes tenant compte de la suppression de l'inversion par l'émission des impulsions. Dès qu'on tient compte dans (14.4) et (14.5) des transitions stimulées $(n_2 - n_1)W_{21}$ et $(n_1 - n_2)W_{12}$, ces équations deviennent non linéaires puisque la probabilité des transitions stimulées dépend de la densité du champ d'émission, cette dernière étant fonction du nombre de particules participant à l'émission. La situation devient semblable à celle qui apparaît lors du déclenchement de Q d'une cavité résonnante dans le procédé de commutation du facteur de surtension (voir leçon 11).

Considérons une représentation simplifiée des niveaux d'énergie. Tant que le système ne rayonne pas, les équations (14.4) à (14.6) décrivent la cinétique d'occupation des niveaux énergétiques d'un laser à transitions auto-limitées à condition que

$$K_1N_e \ll K_2N_e, \qquad \tau_1 \gg \tau_2. \tag{14.14}$$

Si l'on pose pour simplifier que $\tau_1 = \infty$ et $K_1N_e = 0$, $dn_1/dt = 0$ tant qu'il n'y a pas d'émission. Il s'ensuit que $n_1 = \text{const}$. Comme on peut poser que dans la gamme optique $n_1(0) = 0$, la constante n_1 est égale à zéro. Dans ces conditions l'inversion $n_2 - n_1$ se confond avec le nombre de particules occupant le niveau supérieur

$$n_2 = \frac{K_2N_e}{K_2N_e + 1/\tau_2} N(1 - \exp[-(K_2N_e + 1/\tau_2)t]). \tag{14.15}$$

En supposant que le pompage est très intense ($K_2N_e \gg 1/\tau_2$), un déclenchement très rapide d'une forte inversion se produira au cours du temps très court $1/K_2N_e$, qui est beaucoup plus court que la durée de vie τ_2 ($\tau_2 \gg$ $\gg 1/K_2N_e$) du niveau de résonance, suivant la loi

$$n_2 = N(1 - e^{-K_2N_et}). \tag{14.16}$$

Si le déclenchement se produit dans un résonateur stationnaire de facteur de surtension Q, l'évolution ultérieure de l'impulsion d'émission dans le résonateur s'effectue de la même façon que lorsque l'inversion n_2 est stationnaire et qu'on réalise un déclenchement de Q.

Le régime de déclenchement de l'inversion est désigné sous le nom de déclenchement d'amplification. Pour en faire l'étude il faut trouver la solution d'équations non linéaires de la forme (11.14) et (11.15). Toutes les conclusions qui ont été formulées à propos du régime de déclenchement de Q (voir leçon 11) seront valables dans le cas étudié.

Dans le cas d'une forte inversion, le système émet au cours de l'émission d'une impulsion une énergie de l'ordre de

$$W_{\text{imp}} = n_2h\nu/2. \tag{14.17}$$

La puissance de crête dépend de la durée de vie caractéristique du photon dans la cavité résonnante $\tau_{\text{ph}} = Q/\omega$ (cf. formule (7.17)) :

$$P_{\text{imp}} = n_2h\nu/2\tau_{\text{ph}}. \tag{14.18}$$

Le taux de croissance de l'intensité du rayonnement dans l'impulsion est supérieur à $1/\tau_{\text{ph}}$ et le taux de sa décroissance est de l'ordre de $1/\tau_{\text{ph}}$. Selon (6.2) et (7.17) la valeur de τ_{ph} peut être estimée à l'aide de la formule

$$\tau_{\text{ph}} = \frac{l/c}{1 - R}. \tag{14.19}$$

Lorsque le facteur d'amplification est grand, ce qui implique que R est petit, on trouve pour l = 10 à 100 cm la valeur minimale τ_{ph} = 0,3 à 3 ns.

Reprenons la question du rendement des lasers à décharge dans les gaz. En régime impulsionnel la formule (14.13) ne s'applique plus. On sait qu'après déclenchement de l'inversion l'émission stimulée dure jusqu'à ce que les populations des niveaux s'égalisent. Une partie de la population du niveau supérieur reste inutilisée. Sans dégénérescence cette partie est égale à 1/2, qui est la valeur qu'on a utilisée dans les estimations données ci-dessus. Lorsqu'il y a dégénérescence, cette partie dépend du rapport des poids statistiques g_s et g_i des niveaux supérieur et inférieur et représente $g_i/(g_i + g_s)$. En définitive le rendement d'un laser à transitions auto-limitées se présente sous la forme

$$\eta = \eta_i \frac{h\nu}{E_s} \frac{g_i}{g_i + g_s} = \eta_i\eta_{\text{lim}}, \tag{14.20}$$

où

$$\eta_{lim} = \frac{g_i}{g_i + g_s} \frac{h\nu}{E_s} \qquad (14.21)$$

est le rendement limite d'une transition qu'on obtient lorsque toute l'énergie est utilisée pour exciter le niveau supérieur d'énergie E_s. En fait η_{lim} est la caractéristique laser d'une transition. Le facteur $g_i/(g_i + g_s)$ est généralement compris entre 1/3 et 2/3. Le rapport $h\nu/E_s$ pour les atomes dont le niveau inférieur correspond à une énergie peu élevée peut être égal à 0,5-0,7. Il est donc en principe possible de trouver des transitions pour lesquelles η_{lim} = 0,3 à 0,5. Il est plus difficile d'évaluer la valeur de η_i. L'expérience témoigne de ce que, compte tenu des dépenses d'énergie servant à produire le plasma, on peut arriver à η_i = 0,3 à 0,5. Ainsi le rendement total pourrait atteindre 10 à 20 %, ce qui correspondrait à un excellent résultat.

Evaluons maintenant les potentialités énergétiques des lasers à transitions auto-limitées. La section d'excitation du niveau de résonance $\sigma = 10^{-16}$ cm^2 pour une densité du nombre d'électrons $N_e = 10^{16}$ cm^{-3} et pour une vitesse électronique relative $v = 10^8$ cm/s correspond à un taux d'excitation $K_2N_e = 10^8$ s^{-1}. Donc au cours d'un temps approximativement égal à 10 ns il s'établit une inversion $n_2 = N$. Pour une densité du nombre de particules égale à 10^{16} cm^{-3}, ce qui correspond à une pression partielle de quelques dixièmes de torr, l'inversion atteint 10^{16} cm^{-3}. Conformément à (14.17), une impulsion émise dans la partie centrale du spectre visible peut contenir une énergie égale à 2 J/l. Avec $1 - R = 0,3$ et pour un résonateur de 1 m de long environ, la durée de l'impulsion émise doit être égale à 10 ns selon (14.19) et la puissance de crête (d'après (14.18)) à 200 MW/l.

Ces différentes estimations montrent que le développement de ce type de lasers serait payant.

Il existe beaucoup de métaux pour lesquels η_{lim} est assez important. La plus grande valeur de η_{lim} correspond à la raie verte du thallium : η_{lim} = 47 %, λ = 535,0 nm. On trouve des valeurs un peu plus faibles avec le plomb, l'or et le cuivre. Actuellement le laser au cuivre possède le meilleur rendement et la plus grande puissance d'émission moyenne en régime d'impulsions périodiques.

La représentation des niveaux d'énergie de l'atome de cuivre est donnée sur la figure 14.4. Deux niveaux rapprochés $^2P_{1/2}$ et $^2P_{3/2}$ sont efficacement excités par choc électronique. On ne connaît pas exactement leurs sections d'excitation ; selon les estimations elles seraient égales à $9,7 \cdot 10^{-16}$ cm^2 pour $^2P_{3/2}$ et à $4,5 \cdot 10^{-16}$ cm^2 pour $^2P_{1/2}$, et seraient donc plus grandes que chez les autres métaux. On observe une émission pour les transitions de ces niveaux aux niveaux métastables $^2D_{3/2}$ et $^2D_{5/2}$. L'existence de deux raies d'émission seulement résulte du phénomène de compétition.

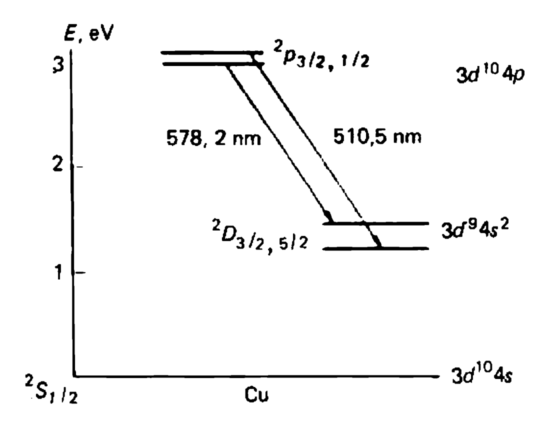


Fig. 14.4. Représentation des niveaux actifs du laser à vapeur de cuivre. A droite des niveaux sont indiquées les configurations électroniques correspondantes.

Les durées de vie des niveaux supérieurs sont assez grandes par suite du piégeage de l'émission et dans les conditions réelles elles sont égales à 800 et 400 ns environ, ce qui facilite le choix de la source d'alimentation par impulsions. On a obtenu une émission à 1500 °C (la tension de la vapeur de cuivre est de 0,4 torr, et la densité des particules est égale à $2 \cdot 10^{15}$ cm^{-3}). A cette température la population d'équilibre boltzmannienne du niveau $^2D_{5/2}$ (11 203 cm^{-1}) est égale à $5 \cdot 10^{11}$ cm^{-3} environ. La puissance de l'émission sur la raie verte (510,5 nm) est notablement plus grande que celle émise sur la raie jaune (578,2 nm). La durée des impulsions émises est de 5 à 10 ns, la puissance de crête est de 200 kW. Pour une cadence de répétition des impulsions de 20 kHz on a obtenu une puissance d'émission moyenne de 40 à 50 W et un rendement de 1 %. Ces données sont relatives à une température de 1600 à 1700 °C, à un tube de décharge de 80 à 100 cm de long et de 15 à 25 mm de diamètre.

On dispose de preuves expérimentales que la cadence de répétition des impulsions peut être portée jusqu'à 100 kHz. A cette cadence correspond une durée de vie du niveau inférieur de 10 μs.

Le rendement peut être amélioré si la durée de l'impulsion du courant de décharge correspond au temps de création et d'existence de l'inversion. Le remplacement de la décharge longitudinale par la décharge transversale offre d'intéressantes potentialités.

Le régime de fonctionnement à hautes températures des tubes de décharge des lasers pose de sérieux problèmes. On utilise des tubes en céramique à base de Al_2O_3 et BeO. Pour empêcher l'impact du gaz chaud sur les fenêtres de la cuve du laser et sur les parties froides des parois de celle-ci, ainsi que pour ménager un canal de décharge dans la région comprise entre

les électrodes froides et le gaz chaud, on dispose en qualité de gaz tampon du néon ou de l'hélium sous une pression de quelques torrs.

Au lieu de vaporiser du cuivre métallique on peut soumettre à la dissociation les molécules des composés volatils contenant du cuivre, ou encore en vaporisant par choc thermique des fils fins de cuivre, etc. Dans chaque cas particulier on doit peser le pour et le contre de ces différentes méthodes de production des vapeurs de métaux réfractaires.

On notera enfin que le laser à vapeur de cuivre fonctionnant à une haute cadence de répétition des impulsions est actuellement la meilleure source laser de radiation dans la région verte du spectre.

Quinzième leçon. LES LASERS À CO_2

Lasers moléculaires. Conditions auxquelles doit satisfaire le matériau d'émission des lasers de grande puissance et de rendement élevé. Spectres vibrationnels des molécules. Branches P, Q et R des spectres. Vibrations normales des molécules polyatomiques. Données générales sur le laser à CO_2. La molécule de CO_2. Mécanisme de l'inversion. Rôle joué par l'azote et par l'hélium. Lasers à pompage longitudinal. Lasers scellés.

Parmi les lasers à gaz une place importante revient aux lasers moléculaires, i.e. aux lasers dont le milieu actif est constitué par des gaz moléculaires. La raison en est que de nombreux éléments réfractaires dont la tension de vapeur est infiniment petite dans les conditions ordinaires forment des composés volatils stables. On connaît un grand nombre de gaz moléculaires. Seuls les gaz rares sont des gaz atomiques stables formés d'atomes chimiquement inactifs. Il y a peu de gaz atomiques.

Les spectres moléculaires sont beaucoup plus compliqués que les spectres atomiques. Cela tient à ce que dans les molécules le mouvement est plus compliqué que dans les atomes. Outre le mouvement des électrons autour des noyaux des atomes constituant la molécule, on observe des mouvements vibratoires des noyaux par rapport à leurs positions d'équilibre et un mouvement rotatoire d'ensemble de la molécule. Dans le microcosme chaque mouvement limité est quantifié. Par conséquent à ces différents mouvements sont associés des niveaux énergétiques bien déterminés. Les transitions entre ces niveaux donnent naissance à des spectres électroniques de bandes dans la partie visible et ultraviolette du spectre, à des spectres vibrationnels de bandes dans l'infrarouge et des spectres rotationnels de raies dans l'infrarouge lointain et dans le domaine UHF.

Les grandes potentialités spectrales des systèmes moléculaires permettent de trouver des niveaux d'énergie convenant à la création d'un milieu actif adéquat, tandis que la multitude des mouvements intérieurs dans les molécules permet de choisir la voie de relaxation assurant le maintien de l'inversion.

A cette étape de notre exposé on peut énoncer les conditions générales auxquelles doivent satisfaire les matériaux pour lasers à gaz de grande puissance à fort rendement. En fait ces conditions ne sont que la généralisation de ce qu'on connaît déjà sur les lasers à gaz.

Tout d'abord le niveau laser supérieur doit avoir une durée de vie relativement grande. Pour assurer le régime d'émission continu il faut que la durée de vie du niveau inférieur soit courte. Afin d'obtenir un rendement raisonnable, il faut que le niveau inférieur se trouve assez bas dans l'échelle des énergies, mais assez haut cependant pour ne pas être occupé du fait de l'agitation thermique. Il s'ensuit que la courte durée de vie du niveau inférieur ne peut être radiative. Compte tenu de la possibilité du piégeage de l'émission, le dépeuplement radiatif du niveau laser inférieur fondamental ne peut être le mécanisme de ce processus. Il s'ensuit que son dépeuplement doit être de nature collisionnelle. Or les chocs ne sont efficaces que lorsque l'énergie échangée n'excède pas l'énergie d'agitation thermique. Mais comme l'énergie du niveau inférieur doit être plus grande que l'énergie du mouvement thermique, le mécanisme de relaxation collisionnelle doit comporter plusieurs étapes passant par plusieurs niveaux intermédiaires.

En général ce sont les molécules qui satisfont au mieux à ces conditions.

Décrivons d'abord, très brièvement, les spectres moléculaires.

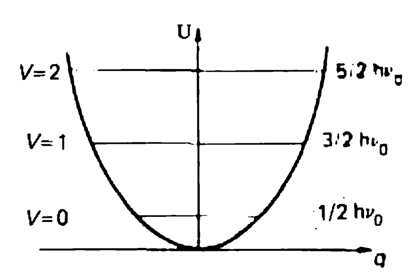
Aux trois types de mouvements qu'on discerne dans les molécules, à savoir électronique, vibratoire et rotatoire, correspondent trois types d'états quantifiés et donc trois groupes de niveaux d'énergie. L'énergie totale E de la molécule possède une valeur déterminée correspondant à un état donné englobant les trois types d'états quantifiés. A un haut degré d'approximation on peut considérer cette énergie comme la somme des valeurs quantifiées des énergies des mouvements électronique, vibratoire et rotatoire :

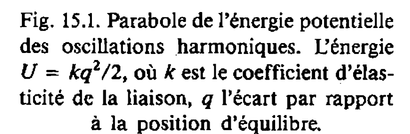
$$E = E_{él} + E_{vib} + E_{rot}. \qquad (15.1)$$

Les valeurs de $E_{él}$, E_{vib} et E_{rot} sont liées entre elles par la relation

$$E_{él} : E_{vib} : E_{rot} = 1 : \sqrt{m/M} : m/M, \qquad (15.2)$$

où m est la masse au repos de l'électron, M la masse totale des noyaux atomiques. En général $m/M = 10^{-3}$ à 10^{-5}, et $E_{él}$ est de l'ordre de quelques électrons-volts, ce qui équivaut à quelques unités de 10^4 cm^{-1}. On trouve alors $E_{vib} \approx 10^{-1}$ à 10^{-2} eV (10^3 à 10^2 cm^{-1}) et $E_{rot} \approx 10^{-3}$ à 10^{-5} eV (10 à 10^{-1} cm^{-1}). La différence des ordres de grandeur de $E_{él}$, E_{vib} et E_{rot} tient à ce que la rotation d'ensemble de la molécule et les déplacements des noyaux dans la molécule sont relativement lents devant la vitesse du mouvement électronique, en raison de la différence des masses en mouvement. Le système des niveaux d'énergie d'une molécule se compose donc de l'ensemble des niveaux électroniques espacés, de l'ensemble des niveaux




Fig. 15.1. Parabole de l'énergie potentielle des oscillations harmoniques. L'énergie $U = kq^2/2$, où k est le coefficient d'élasticité de la liaison, q l'écart par rapport à la position d'équilibre.

vibrationnels qui sont moins espacés et de l'ensemble des niveaux rotationnels qui sont encore plus proches les uns des autres. Dans chaque état électronique on peut rencontrer des vibrations et dans chaque état vibratoire on peut rencontrer des mouvements de rotation. L'énergie correspondant à ces mouvements supplémentaires joue le rôle d'une petite perturbation et provoque l'éclatement des niveaux d'énergie de l'état principal, i.e. de l'état caractérisé par les plus grandes énergies. C'est ce qui détermine l'apparition des bandes de niveaux moléculaires.

Considérons pour l'instant les lasers moléculaires émettant dans l'infrarouge. A ces lasers correspondent les spectres vibratoires, plus exactement les spectres de rotation-vibration. On détermine les niveaux énergétiques vibrationnels en quantifiant l'énergie vibratoire, en admettant en première approximation que les vibrations sont harmoniques.

On considère la molécule diatomique, qui est un système disposant d'un seul degré de liberté vibrationnel, comme un oscillateur harmonique linéaire, et la molécule polyatomique comme un système vibratoire disposant de plusieurs degrés de liberté qui exécute de petites vibrations. Le nombre de degrés de liberté vibrationnels est égal à $3N - 5$ pour les molécules à configuration d'équilibre linéaire et à $3N - 6$ pour les molécules qui ne sont pas linéaires. N désigne le nombre d'atomes formant la molécule.

Le cas le plus simple est celui de la molécule diatomique. Dans le cas de petites oscillations harmoniques, lorsque la force de rappel est élastique, i.e. proportionnelle aux déplacements par rapport aux positions d'équilibre, la courbe représentant l'énergie potentielle est une parabole (fig. 15.1). On sait que la quantification dans un puits de potentiel parabolique fournit des niveaux énergétiques équidistants :

$$E_{\text{vib}} = h\nu_0(V + 1/2), \tag{15.3}$$

où V est le nombre quantique vibrationnel pouvant prendre les valeurs $V = 0, 1, 2, \ldots$ Pour $V = 0$, la formule (15.3) donne l'énergie des vibrations de zéro $h\nu_0/2$. Pour les transitions dipolaires la règle de sélection

$$\Delta V = V' - V'' = \pm 1 \tag{15.4}$$

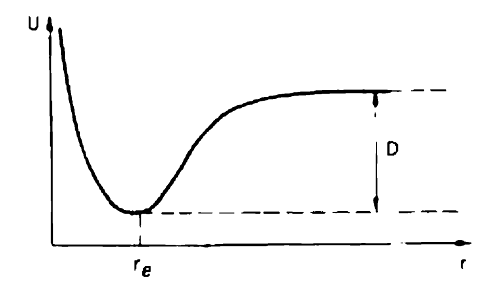


Fig. 15.2. Courbe de l'énergie potentielle d'une molécule diatomique : D — énergie de dissociation, r_e — distance d'équilibre des noyaux atomiques.

doit être rigoureusement vérifiée ; on déduit l'énergie du quantum absorbé ou émis $h\nu = h\nu_0$, comme indiqué sur la figure 15.1. La valeur ν_0 de la fréquence coïncide avec celle de la fréquence classique des petites vibrations élastiques :

$$\nu_0 = \sqrt{k/M}\,, \tag{15.5}$$

où k est le coefficient d'élasticité de la liaison dans la molécule et M la masse réduite de la molécule.

La courbe réelle représentant l'énergie potentielle ne peut être assimilée à une parabole qu'à proximité du minimum, i.e. près de la position d'équilibre des noyaux (fig. 15.2). Lorsque l'écart par rapport à l'équilibre est important, ce qui implique une forte excitation, la courbe de l'énergie potentielle diffère grandement de la parabole, ce qui donne lieu à ce qu'on appelle les vibrations anharmoniques. Par suite de l'apparition des vibrations anharmoniques, les niveaux d'énergie vibrationnels se rapprochent à mesure que croît le nombre quantique vibrationnel V. Les fréquences des transitions $V = 1 \to V = 0$, $V = 2 \to V = 1$, $V = 3 \to V = 2$, etc., cessent d'être égales. On observe l'apparition dans les spectres d'émission (ou d'absorption) à côté de la transition à la fréquence fondamentale $1 \leftrightarrow 0$ ($\Delta V = \pm 1$) des harmoniques : le premier $2 \leftrightarrow 0$ ($\Delta V = \pm 2$), le second $3 \leftrightarrow 0$ ($\Delta V = 3$), etc., dont les intensités décroissent fortement à mesure que ΔV augmente. Il s'ensuit que dans ces conditions la formule (15.3) et la règle de sélection (15.4) ne sont pas valables.

En première approximation, si l'on remplace (15.3) par l'expression

$$E_{\text{vib}} = h\nu_0(V + 1/2) - \chi h\nu_0(V + 1/2)^2, \tag{15.6}$$

où la constante d'anharmonicité $\chi \ll 1$, on arrive à un accord satisfaisant avec la situation réelle. Physiquement l'apparition de vibrations anharmoniques résulte de la dissociation des molécules. A mesure que croît l'amplitude des vibrations, ce qui en physique classique correspond à une croissance du nombre quantique vibrationnel V, l'élasticité des liaisons dans la molécule diminue. La solidité de la molécule diminue et elle finit par se décomposer. Cela se traduit par une diminution de la pente de la branche

de droite de la courbe représentée sur la figure 15.2. La partie horizontale de cette courbe correspond à un mouvement infini des atomes les uns par rapport aux autres, ce qui implique la dissociation de la molécule.

On établit aisément une relation entre la constante d'anharmonicité χ et l'énergie de dissociation D. A l'aide de (15.6) on trouve l'énergie du quantum $h\nu$ de la transition avec $\Delta V = 1$ sous la forme

$$h\nu = h\nu_0[1 - 2\chi(V + 1)]. \tag{15.7}$$

A l'approche du seuil de dissociation les niveaux vibrationnels se rapprochent et l'énergie du quantum tend vers zéro. Cela se produit lorsque le nombre quantique vibrationnel V tend vers la valeur

$$V_{max} = 1/2\chi - 1 \approx 1/2\chi. \tag{15.8}$$

En portant cette valeur dans l'expression (15.6) de l'énergie vibratoire de l'oscillateur anharmonique, on trouve la plus grande valeur possible de cette énergie

$$E_{vib}^{max} \approx h\nu_0(V_{max} - \chi V_{max}^2) = h\nu_0/4\chi. \tag{15.9}$$

Par définition la plus grande valeur de l'énergie vibratoire de l'oscillateur anharmonique est égale à l'énergie de dissociation de la molécule considérée : $E_{vib}^{max} = D$ (voir fig. 15.2). Par conséquent,

$$\chi = h\nu_0/4D. \tag{15.10}$$

L'application de la formule (15.10) où l'on utilise les valeurs spectroscopiques de χ obtenues d'après (15.7) permet d'évaluer l'énergie de dissociation avec une erreur de 10 à 30 %. On notera cependant que la formule (15.10) reflète correctement la nature du phénomène. Plus grande est l'énergie de dissociation, i.e. plus la molécule est solide, plus l'approximation de l'oscillateur harmonique (tout au moins pour les niveaux inférieurs) fournit des résultats valables.

Il convient de ne pas oublier qu'outre l'énergie vibratoire, il existe encore l'énergie rotatoire. Comme $E_{rot} \ll E_{vib}$, les rotations provoquent l'éclatement du niveau vibrationnel en sous-niveaux rotationnels. On trouve toujours dans le spectre IR des molécules une bande vibratoire due à l'existence de niveaux énergétiques rotationnels. Pour déterminer ces derniers on doit quantifier l'énergie rotatoire dans l'approximation où l'on assimile la molécule à un corps solide caractérisé par les moments d'inertie principaux $I_x \neq I_y \neq I_z$.

Pour une molécule diatomique $I_x = I_y = M\varrho^2$, $I_z = 0$ (z est l'axe de la molécule), où M est la masse réduite et ϱ la distance entre les noyaux de la molécule. On trouve en quantifiant

$$E_{rot} = BJ(J + 1), \tag{15.11}$$

où $J = 0, 1, 2, 3, \ldots$ est le nombre quantique rotationnel et $B = \hbar^2/2I = \hbar^2/2M\varrho^2$ est la constante de rotation. La multiplicité de la dégénérescence du niveau rotationnel est égale à $2J + 1$. Tous ces développements s'appliquent aux molécules linéaires polyatomiques en posant $I = \sum m_i r_i^2$.

La structure rotationnelle de la bande vibrationnelle du spectre est déterminée par la variation que subit l'énergie de rotation lors d'une transition vibrationnelle

$$E'_{\mathrm{rot}} - E''_{\mathrm{rot}} = B'J'(J' + 1) - B''J''(J'' + 1). \tag{15.12}$$

Pour les transitions dipolaires la règle de sélection

$$\Delta J = J' - J'' = 0, \ \pm 1 \tag{15.13}$$

est strictement vérifiée, ce qui donne naissance aux branches P, Q et R. Par définition dans la branche P, $\Delta J = -1$, dans la branche Q, $\Delta J = 0$, et dans la branche R, $\Delta J = +1$. Pour les molécules linéaires la transition avec $\Delta J = 0$ est interdite et par suite la branche Q manque.

Dans l'approximation harmonique et compte tenu des règles de sélection (15.13) et (15.4) les fréquences des transitions dans les branches P et R sont données par les relations simples conformément aux formules (15.3) et (15.11) :

$$h\nu = h\nu_0 - 2BJ \quad \text{pour la branche } P, \tag{15.14}$$

$$h\nu = h\nu_0 + 2BJ \quad \text{pour la branche } R, \tag{15.15}$$

où J est le nombre quantique rotationnel du sous-niveau de départ (cas de l'absorption). Les expressions (15.4) et (15.5) montrent que la distance entre les raies voisines, correspondant aux transitions de vibration-rotation dans les branches P et R de la branche de rotation, dépend de la constante rotationnelle et a pour valeur $2B$.

Les formules (15.14) et (15.15) ont été obtenues en supposant que B restait constant pendant l'excitation vibrationnelle. Or à mesure que l'amplitude des vibrations croît, la molécule devient de moins en moins rigide et sa dimension effective augmente. De ce fait la constante rotationnelle B diminue un peu lorsque le nombre quantique vibrationnel V croît. Dans les branches P et R cette diminution de B est généralement peu notable mais se manifeste dans le spectre de la branche Q ; conformément à (15.3), (15.4), (15.11) et (15.13) dans cette branche la fréquence des transitions de vibration-rotation est donnée par la formule

$$h\nu = h\nu_0 + J(J + 1)(B'' - B'). \tag{15.16}$$

La faible différence des valeurs des constantes rotationnelles $B'' - B'$ de deux états vibratoires voisins V' et $V'' = V' + 1$ a pour conséquence

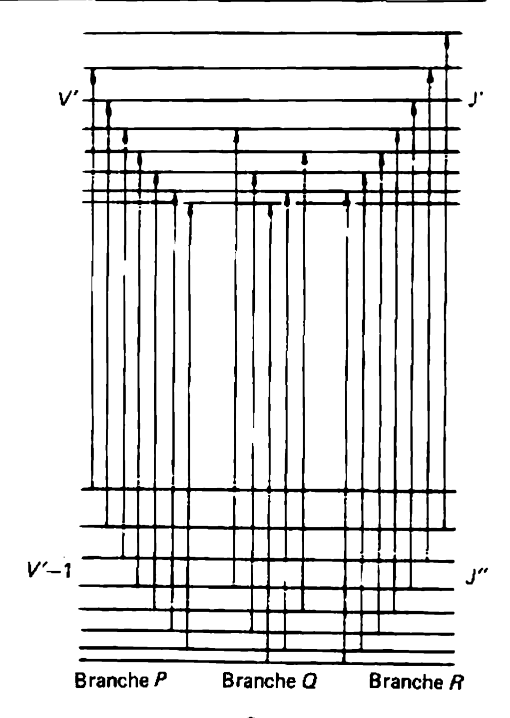




Fig. 15.3. Représentation des transitions P, Q et R de la bande de vibration $V' \to V' - 1$.

que la branche Q est beaucoup plus étroite que les branches P et R. Il a été indiqué que la multiplicité de dégénérescence des états rotatoires est égale à $2J + 1$. On doit tenir compte de ce poids statistique dans le calcul de la population d'équilibre du sous-niveau rotationnel :

$$n_J \propto (2J + 1) \exp [-BJ(J + 1)/kT]. \qquad (15.17)$$

La variation concomitante du facteur se trouvant devant l'exponentielle et de cette dernière détermine l'allure non monotone du peuplement des états ayant des J différents à une température donnée du gaz. En différentiant (15.17), on trouve facilement que le plus peuplé est l'état rotatoire dont le nombre quantique rotationnel est égal à

$$J_{max} = \sqrt{kT/2B} - 1/2 \approx \sqrt{kT/2B}. \qquad (15.18)$$

La figure 15.3 donne une représentation des transitions dans les branches P, Q et R de la bande de vibration $V' \to V' - 1$; dans la partie inférieure

de cette figure on a représenté le spectre de ces branches, qui illustre les considérations développées plus haut.

Généralement la distribution d'équilibre (15.17) s'établit rapidement dans le système des sous-niveaux rotationnels même si la distribution d'équilibre des populations entre les niveaux vibrationnels est fortement perturbée. Cela résulte de ce que l'éclatement rotatoire est beaucoup plus petit que kT, de sorte que les molécules échangent facilement l'énergie rotatoire au cours des chocs en milieu gazeux. Cela signifie que la durée de la relaxation rotationnelle n'est pas plus grande que l'intervalle de temps s'écoulant entre deux chocs successifs entre les molécules gazeuses.

En première approximation on peut assimiler une molécule polyatomique à un ensemble d'oscillateurs harmoniques. Cela signifie que dans l'approximation des petites vibrations l'énergie vibratoire de la molécule est donnée par

$$E_{\text{vib}} = \sum_{i=1}^{r} h\nu_i(V_i + 1/2), \qquad (15.19)$$

où r est le nombre de degrés de liberté vibrationnels, V_i le nombre quantique vibrationnel du i-ième oscillateur dont la fréquence ν_i est appelée fréquence de la vibration normale.

La notion de fréquence de vibration normale des molécules facilite grandement le dépouillement des spectres moléculaires et la détermination de la structure des molécules. Selon la théorie des vibrations, les vibrations normales sont les vibrations harmoniques propres qui existeraient dans les systèmes oscillants linéaires à plusieurs degrés de liberté si l'énergie ne s'y dissipait pas. Dans chaque vibration normale tous les points du système vibrent à la même fréquence. Le nombre de vibrations normales est égal au nombre de degrés de liberté vibrationnels du système. Toutes les vibrations normales sont indépendantes en ce sens qu'on ne peut exciter en principe que l'une d'elles. L'ensemble des fréquences des vibrations normales est déterminé par l'ensemble des fréquences de résonance propres du système oscillant. L'analogie avec les modes des résonateurs ouverts est évidente. En fait la notion des vibrations normales dans les molécules et celle des modes dans les résonateurs ouverts sont identiques. Ces derniers temps on utilise de plus en plus souvent le terme « mode » dans la description des vibrations des molécules.

Dans une molécule, à côté de la possibilité de vibration de tous les atomes qui la constituent, il arrive souvent que les vibrations de certaines parties de la molécule prédominent ; ces vibrations préférentielles modifient les longueurs et les angles de certaines liaisons. Si l'on connaît la forme des vibrations normales ou des modes vibratoires d'une molécule, on pourra décrire les mouvements relatifs de ses différentes parties et distinguer les vibrations localisées. Afin de concrétiser les différents cas possibles

on divise les vibrations normales des molécules en vibrations de valence caractérisées par la variation de la longueur des liaisons et en vibrations de déformation caractérisées par la variation des angles entre les liaisons.

Bien entendu n'importe quel état vibratoire permis dans la molécule résulte de la superposition des états de l'unique ensemble des $3N - 6$ (ou $3N - 5$) oscillateurs normaux. Les types de symétrie des vibrations sont imposés par le groupe de symétrie ponctuel de la molécule.

Il convient de noter que dans une molécule polyatomique la spécificité des vibrations normales diminue à mesure que le nombre quantique vibrationnel V augmente. Néanmoins l'état vibratoire de la molécule est caractérisé par un ensemble de nombres quantiques vibrationnels V_i caractérisant toutes ses vibrations normales ou, comme on le dit volontiers, caractérisant tous ses modes vibratoires dont le nombre total est égal au nombre de degrés de liberté vibrationnels de la molécule.

On désigne généralement les modes de la molécule par les symboles $\nu_1, \nu_2, \nu_3, \ldots, \nu_r$ (où $r = 3N - 6$ ou $3N - 5$). L'anharmonicité résultant de la dissociation de la molécule met en défaut la règle de sélection $\Delta V = \pm 1$ et fait apparaître dans le spectre de vibration de la molécule des harmoniques des fréquences fondamentales. On désigne les états correspondants par $2\nu_1$, $3\nu_2$, $2\nu_3$, etc. Les transitions radiatives entre l'état fondamental et le deuxième, le troisième, etc., état excité d'un certain mode évoluent à des fréquences double, triple, etc., avec variations appropriées du nombre quantique vibrationnel $\Delta V_1 = 2$, $\Delta V_2 = 3$, $\Delta V_3 = 2$, etc. D'autre part, l'anharmonicité dans les molécules polyatomiques conduit à l'apparition dans le spectre vibratoire de fréquences dites composées grâce à la variation simultanée de deux ou de plusieurs nombres quantiques vibrationnels, ce qui implique des transitions sur des états vibratoires composés. Par exemple, à la transition de l'état fondamental à l'état composé $\nu_1 + \nu_2$ correspondent simultanément $\Delta V_1 = 1$ et $\Delta V_2 = 1$ et à l'état $2\nu_2 - \nu_1$, les valeurs $\Delta V_1 = -1$ et $\Delta V_2 = +2$. Autrement dit, l'anharmonicité détruit l'indépendance des vibrations normales en couplant les oscillateurs quasi harmoniques correspondants. Remarquons à ce propos que la solidité des diverses liaisons de la molécule étant différente, les différents modes se caractérisent par des énergies de dissociation différentes et donc par des constantes d'anharmonicité intramode différentes.

La possibilité de transitions vers des états vibratoires dépend de leur symétrie. Si lors d'une certaine vibration de la molécule son moment dipolaire reste constant, la transition correspondante est interdite dans l'approximation dipolaire. A titre d'exemple citons les vibrations de valence symétriques des molécules qui sont actives dans les spectres de diffusion Raman et qui sont inactives dans les spectres d'absorption IR. Ainsi se comportent toutes les molécules formées de deux atomes identiques en forme

d'haltère symétrique (O_2, N_2, H_2, etc.). Ce type de vibrations peut se manifester aussi dans les molécules polyatomiques.

L'existence de plusieurs modes vibratoires dans les molécules polyatomiques, les différences de leurs fréquences et de leurs localisations assurent l'existence de plusieurs canaux de relaxation de l'énergie d'excitation avec des taux de relaxation différents. Par un choix convenable de la pression et de la composition du mélange gazeux, on peut donc favoriser les conditions de création et de conservation de l'inversion de population. D'autre part, comme le spectre de vibration est à plusieurs modes, on arrive à séparer les canaux d'excitation et d'émission, ce qui favorise l'émission laser.

Le laser à CO_2 est un exemple typique de laser moléculaire dont le milieu actif gazeux satisfait aux conditions requises pour assurer une émission puissante et un rendement élevé.

Le laser à CO_2, i.e. le laser dont la composante lasante du milieu actif est le gaz carbonique CO_2, occupe une place exceptionnelle parmi tous les autres lasers. Avant tout c'est un laser de grande puissance à haut rendement. En régime continu on obtient des puissances atteignant plusieurs dizaines de kilowatts, la puissance d'impulsion atteint le niveau de plusieurs gigawatts, tandis que l'énergie concentrée dans une impulsion se chiffre en kilojoules. Le rendement des lasers à CO_2 (qui est de l'ordre de 30 %) est le plus grand de tous les lasers. La fréquence de répétition périodique des impulsions peut atteindre plusieurs kilohertz. La longueur d'onde de l'émission du laser à CO_2 est comprise entre 9 et 10 μm (IR moyen) et correspond à une fenêtre atmosphérique centrée autour de 10 μm. De ce fait l'émission du laser à CO_2 convient particulièrement bien aux traitements technologiques intenses des matériaux. D'autre part, la bande d'émission du laser à CO_2 couvre les fréquences de résonance à l'absorption de nombreuses molécules, ce qui permet d'utiliser l'émission de ce laser au traitement par résonance de nombreux matériaux. On notera qu'on peut réaliser un accord à large bande de la fréquence d'émission, soit continu soit discret, et étendre ainsi ses potentialités d'application. De plus le laser à CO_2 peut émettre sur une fréquence unique.

On conçoit l'intérêt qu'on accorde aux lasers à CO_2.

La molécule CO_2 possède trois vibrations normales : une vibration de valence symétrique ν_1, une vibration de déformation ν_2 et une vibration de valence asymétrique ν_3. La vibration de déformation est doublement dégénérée. De ce fait l'occupation des niveaux vibrationnels de la molécule CO_2, aussi bien des niveaux des fréquences normales ν_1, ν_2, ν_3 que de leurs harmoniques et des niveaux correspondant aux vibrations composées, détermine l'ensemble des nombres quantiques vibrationnels V_1, V_2, V_3 qui caractérise l'état vibratoire de la molécule. On désigne les niveaux par les différentes combinaisons des nombres quantiques V_1, V_2^l, V_3. L'indice l est

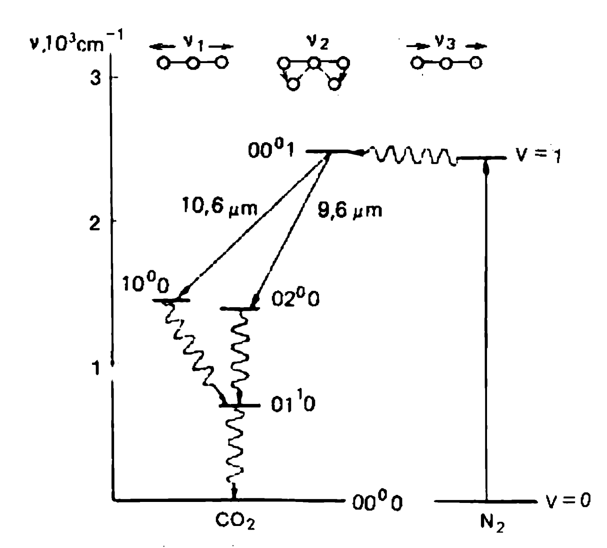


Fig. 15.4. Représentation des niveaux vibrationnels inférieurs des molécules CO_2 et N_2 se trouvant à l'état électronique fondamental : les flèches obliques symbolisent les transitions déterminant l'émission, la flèche pointant vers le haut l'excitation de l'azote, la ligne ondulée horizontale le transfert de l'énergie d'excitation de l'azote à CO_2 et les autres lignes ondulées symbolisent le dépeuplement de relaxation des niveaux lasers inférieurs.

introduit en raison de la dégénérescence de la vibration de déformation ν_2. Seuls nous importent les niveaux vibrationnels inférieurs de l'état électronique fondamental ; ces niveaux, ainsi que la représentation conventionnelle des vibrations de la molécule CO_2 sont indiqués sur la figure 15.4. La coïncidence fortuite des fréquences des vibrations ν_1 et $2\nu_2$ conduit à la superposition de ces niveaux par l'effet de résonance de Fermi ; dans les processus cinétiques ces niveaux se manifestent souvent comme un état unique. Cette dernière circonstance est fort importante. Le niveau laser inférieur 10^00 de la transition lasante $00^01 \rightarrow 10^00$ possède un faible temps de relaxation du fait de sa forte liaison avec la vibration de déformation 02^00 et donc avec la vibration 01^10. Dans un même mode oscillatoire l'échange d'énergie par collisions s'effectue très rapidement, pratiquement au cours d'une seule collision, vu que la dissipation d'énergie est très petite. La vibration 01^10, comme toute vibration de déformation, possède une forte section de désactivation collisionnelle. Il résulte de raisons purement géométriques que la section du choc non élastique est beaucoup plus petite pour une vibration de valence localisée le long de l'axe de la molécule que pour une vibration de déformation qui peut être excitée (ou désexcitée) par une particule tombant sur la molécule pratiquement sous n'importe quel angle par rapport à son axe.

Si l'on tient encore compte de ce que l'énergie de la première vibration de la molécule N_2 ($\Delta E = 18\ cm^{-1} \ll kT$) coïncide par hasard avec le niveau 00^01 de la molécule CO_2, on arrive à la conclusion que cette dernière remplit toutes les conditions auxquelles doit satisfaire un laser à décharge gazeuse et qu'on a énumérées au début de cette leçon. Les molécules d'azote, qui sont symétriques, possèdent une grande durée de vie à l'état d'excitation vibratoire, se laissent facilement exciter par choc électronique et cèdent aisément leur énergie d'excitation aux molécules CO_2.

Dans une décharge luminescente présentant dans le plasma une intensité réduite de champ électrique $E/p = 5$ V/(cm·torr), une énergie électronique égale à 2-3 eV (excitation résonante des vibrations dans les molécules N_2 dans la gamme $V = 1$ à 8) et une densité électronique de $(0,5$ à $5) \times 10^{10}\ cm^{-3}$, de 40 à 80 % des molécules d'azote sont excitées. La section d'excitation de l'azote est de $3 \cdot 10^{-16}\ cm^2$. Le taux de transfert collisionnel de l'énergie d'excitation de N_2 à CO_2 est de $(1$ à $2) \cdot 10^4\ s^{-1} \cdot torr^{-1}$. Ce transfert d'énergie évolue efficacement entre les harmoniques 00^0n des molécules CO_2 et N_2 jusqu'à la vibration $V = 4$ à 5 de la molécule N_2. C'est de cette façon que s'effectue l'occupation du niveau laser supérieur dans le laser à CO_2.

En ce qui concerne le dépeuplement du niveau laser inférieur, on constata que le premier niveau excité du mode de déformation ν_2 01^10 subissait une relaxation lors des chocs avec des atomes He. L'hélium dépeuple le niveau 01^10 de CO_2 à un taux de $4 \cdot 10^3\ s^{-1} \cdot torr^{-1}$. L'hélium n'affecte pratiquement pas le niveau 00^01 du mode ν_3.

En définitive on peut décrire de la façon suivante le cycle de pompage du laser à CO_2 dans les conditions stationnaires. Les électrons du plasma de la décharge luminescente excitent les molécules d'azote, celles-ci transmettent l'énergie d'excitation reçue à la vibration de valence asymétrique de la molécule CO_2, qui possède une durée de vie importante et constitue le niveau laser supérieur. Généralement le niveau laser inférieur est constitué par le premier niveau excité de la vibration de valence symétrique qui étant fortement lié à la vibration de déformation par la résonance de Fermi, relaxe rapidement avec cette dernière vibration lors des chocs avec les atomes d'hélium. Il est évident que ce même canal de relaxation reste efficace lorsque le niveau laser inférieur est constitué par le second niveau excité du mode de déformation. Par conséquent le laser à CO_2 est un laser dont le milieu actif est un mélange de gaz carbonique, d'azote et d'hélium, où CO_2 assure l'émission, N_2 le pompage du niveau supérieur et He l'évacuation du niveau inférieur.

La figure 15.5 donne une représentation schématique du cycle de pompage d'un certain laser à CO_2. Le diamètre du tube de décharge est de 15 mm, le courant de décharge est égal à 40 mA, l'intensité réduite du

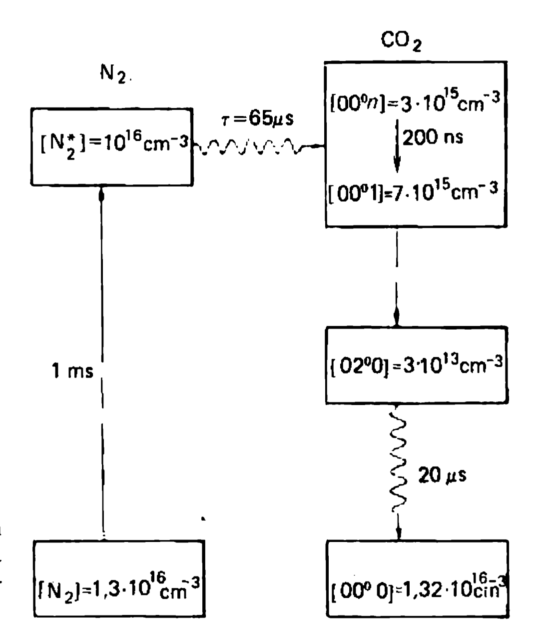


Fig. 15.5. Cycle de pompage d'un laser à CO_2 de basse pression à décharge longitudinale et à circulation longitudinale lente du gaz.

champ électrique est égale à 5 V/(cm·torr), la température du gaz sur l'axe du tube est de 450 K, la pression totale du mélange gazeux est de 15 torrs, les rapports des constituants du mélange CO_2 : N_2 : He sont 1 : 1 : 8. Dans les conditions proches de celles qui sont indiquées sur la figure 15.5 le gain d'un signal faible est de 3 à 4 dB/m, la densité du flux de saturation est de 30 à 60 W/cm^2, la puissance de sortie par unité de longueur et pour un couplage optimal est de 50 à 100 W/m. Pour un laser de 200 cm de long (longueur usuelle des lasers de laboratoire) la transmittance optimale du miroir de sortie est $T_{\text{opt}} = 0{,}4$.

Il convient de souligner que le rôle que joue l'hélium ne se réduit pas seulement au dépeuplement du niveau inférieur, il facilite l'allumage et l'entretien de la décharge luminescente. Dans les mélanges gazeux riches en hélium, la décharge évolue pratiquement de la même façon que dans l'hélium pur, qui est le gaz de prédilection dans les études du plasma. D'autre part l'hélium possède une grande conductibilité thermique, ce qui facilite le refroidissement de CO_2 dans la zone de décharge. Il importe en effet d'empêcher l'échauffement de CO_2 afin d'éviter l'occupation thermique du niveau 01^10 disposé à faible hauteur (cf. fig. 15.4). Indiquons encore que la présence de grandes quantités d'hélium dans la décharge empêche la dissociation de CO_2 par les électrons de la décharge.

Les lasers à CO_2 de moyenne puissance (dizaines-centaines de watts) sont construits sous la forme de tubes relativement longs dans lesquels on

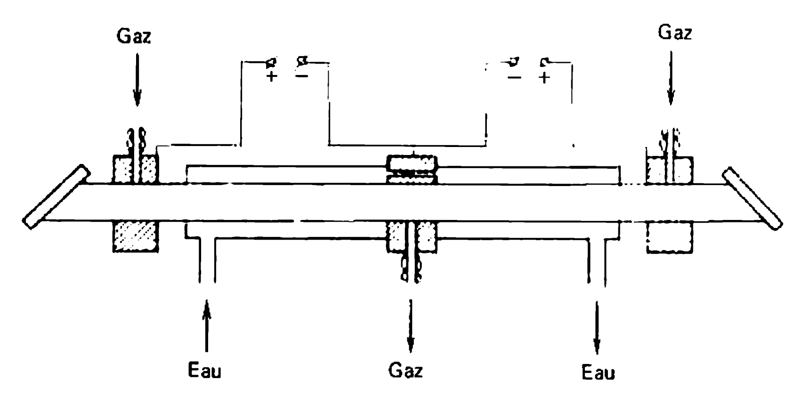


Fig. 15.6. Schéma de principe de l'agencement d'un laser à CO_2 à décharge et à circulation longitudinales. L'eau de refroidissement passe par la cathode.

établit une décharge longitudinale et une circulation longitudinale du gaz. Un exemple de construction correcte est donné sur la figure 15.6. La décharge longitudinale est la plus simple à réaliser ; il suffit de brancher en série avec la décharge une résistance suffisamment grande pour limiter le courant de décharge et pour compenser l'influence de la partie tombante de la caractéristique courant-tension de l'espace de décharge. La circulation longitudinale du gaz est utilisée pour éliminer les produits de dissociation du mélange gazeux dans la décharge. Dans ce type de construction le refroidissement du gaz se produit par sa diffusion jusqu'à la paroi du tube qui est refroidie de l'extérieur. La conductibilité thermique du matériau du tube joue donc un rôle essentiel. C'est pour cela qu'il convient d'utiliser des tubes en céramique à base de Al_2O_3 ou de BeO.

Avec une décharge et une circulation de gaz longitudinales la puissance maximale par unité de longueur (50 à 100 W/m) est indépendante du diamètre du tube de décharge. En effet, lorsqu'on dépasse notablement le seuil d'auto-excitation du laser, la puissance émise est déterminée par le produit du taux de pompage Λ par le volume V du milieu actif :

$$P = \Lambda V h\nu. \tag{15.20}$$

Dans le cas d'une symétrie cylindrique $V = \pi D^2 l/4$, où l est la longueur de la décharge et D le diamètre du tube. Le taux de pompage $\Lambda = dN(00^01)/dt$ dépend du produit de la densité N_0 des molécules se trouvant à l'état fondamental par la densité électronique N_e, par la section d'excitation σ par choc électronique et par la vitesse relative moyenne u :

$$\Lambda = N_0 N_e \sigma u. \tag{15.21}$$

Or le produit $N_e\sigma u$ représente la densité du courant de décharge J, d'où $\Lambda = N_0 J$. Le produit $J\pi D^2/4$ est la valeur du courant de décharge total

$\mathscr{I}$ et par suite

$$P = \mathscr{I} N_0 l h\nu. \tag{15.22}$$

Comme la densité N_0 est proportionnelle à la pression totale p du mélange gazeux, on a

$$P \propto \mathscr{I} pl. \tag{15.23}$$

Nous savons que le produit du courant de décharge par la pression du gaz est une des principales caractéristiques du plasma dans les tubes longs. Dans le plasma stationnaire de la décharge luminescente les conditions du processus de décharge dépendent du produit pD. Lorsque le produit pD est constant, les conditions d'existence du plasma sont constantes (voir leçon 13). Si l'on a déterminé, pour un diamètre donné, la pression optimale, les conditions optimales se conservent tant que le produit pD reste constant. Il s'ensuit que $p = \text{const}/D$ et comme $\mathscr{I} = J\pi D^2/4$, le produit $\mathscr{I} p \propto \text{const}\cdot JD$.

D'autre part le régime thermique joue un rôle important dans le fonctionnement des lasers à CO_2. La quantité de chaleur dégagée dans l'unité de volume est proportionnelle à la densité de courant J. Dans le cas d'une symétrie cylindrique l'évacuation de la chaleur de la partie centrale du filament de décharge vers la périphérie est proportionnelle à $1/D$. Pour qu'un régime thermique optimal puisse être maintenu, il faut que le produit JD reste constant. Il s'ensuit que le produit $\mathscr{I} p$ est une quantité constante et on en conclut que dans les conditions de fonctionnement optimales la puissance de sortie d'un laser à CO_2 à circulation gazeuse et à décharge longitudinales n'est proportionnelle qu'à la longueur du laser :

$$P \propto l. \tag{15.24}$$

On notera que dans nos considérations on n'a pas tenu compte des pertes hors résonance données par la formule $I = (\alpha/\beta)I_S$ (cf. (6.44)) qui imposent une limite à la puissance de sortie maximale du laser. C'est pour cela que la plus grande puissance de sortie qui a pu être obtenue avec une configuration longitudinale ne dépasse que de peu 1 kW (la longueur totale du filament de décharge étant $\approx$ 20 m).

Comme la circulation du mélange gazeux à travers le tube de décharge est nécessaire pour éliminer les produits de dissociation de CO_2, l'addition au mélange gazeux des composants favorisant l'oxydation de CO en CO_2 dans le plasma de la décharge luminescente, permet de fabriquer des lasers à CO_2 en tubes scellés. Le composé d'addition utilisé le plus souvent est l'eau H_2O dont la concentration moléculaire dans le mélange gazeux est inférieure à 1 %. Les lasers à tubes scellés sont très commodes pour les travaux de laboratoire, mais ils ne permettent pas d'obtenir des puissances de sortie supérieures à quelques dizaines de watts.

Seizième leçon. LES LASERS À CO_2 (SUITE)

Caractéristiques spectrales des lasers à CO_2. Structure rotationnelle. Les bandes 00^01 — 10^00 et 00^01 — 02^00. Compétition rotationnelle. Accord de la fréquence d'émission. Accord continu de la fréquence. Décharge par impulsions. Lasers à CO_2 à excitation transversale et à pression atmosphérique. Décharge autonome et semi-autonome. Lasers à gaz dynamiques.

Considérons maintenant les caractéristiques spectrales des lasers à CO_2. A basse pression la largeur de la raie de la transition laser est déterminée par l'effet Doppler et a pour valeur 50 à 60 MHz, ce qui correspond à une température du gaz égale à 400-450 K (cf. leçon 2). Chaque fois que la pression augmente de 1 torr l'élargissement de la raie due aux collisions dépend de la composition du mélange gazeux et représente 4,5 à 6 MHz/torr. Ce n'est qu'aux pressions supérieures à 20-25 torrs que la raie peut être considérée comme homogène. Dans les lasers à CO_2 à circulation longitudinale fonctionnant aux pressions usuelles de plusieurs torrs, la raie d'émission est tellement fine que le laser fonctionne spontanément sur un mode longitudinal unique.

La structure rotationnelle des niveaux de vibration étend notablement la gamme des fréquences d'émission réalisables grâce à l'inversion vibrationnelle. On observe dans une bande vibrationnelle les branches d'émission P et R. Les raies émises sont alors désignées par $P(J)$ et $R(J)$, où J est le numéro du sous-niveau rotationnel du niveau laser inférieur. Dans la branche P les transitions ont lieu de l'état de plus petit J à un état de plus grand J qui, selon la distribution (15.17), est généralement moins peuplé. En conséquence, l'amplification est un peu plus forte pour les transitions de la branche P que pour les transitions de la branche R. La distance entre les raies rotationnelles est légèrement inférieure à 2 cm^{-1}. La vitesse d'établissement de l'équilibre dans un système de sous-niveaux rotationnels est grande (de l'ordre de 10^7 $s^{-1}\cdot torr^{-1}$). C'est pour cela que l'émission qui s'est établie dans les conditions stationnaires sur une certaine raie rotationnelle, celle pour laquelle les conditions d'auto-excitation sont les plus favorables, se poursuivra sur la fréquence de cette raie ; la puissance émise est déterminée par le pompage de tous les sous-niveaux rotationnels de la vibration asymétrique 00^01. L'intense relaxation rotationnelle fournit de l'énergie au sous-niveau qui est dépeuplé par l'émission. L'énergie emmagasinée par tous les sous-niveaux est émise par l'un d'eux. C'est l'effet dit de compétition rotationnelle qui contribue grandement à l'efficacité des lasers à CO_2.

Dans une cavité non sélective on observera l'émission de la raie rotationnelle dont le sous-niveau de départ est le plus peuplé dans l'état vibrationnel 00^01. Le plus souvent ce sont les raies $P(20)$ ou $P(22)$ de la bande 00^01—10^00 correspondant aux fréquences 944,2 et 942,4 cm^{-1} (longueurs d'onde

10,59 et 10,61 μm). Dans la branche *R* de cette bande ce sont les raies *R*(18) et *R*(20) correspondant aux fréquences 974,6 et 975,9 cm^{-1} (longueurs d'onde 10,26 et 10,25 μm) qui possèdent la plus forte amplification. L'examen de la figure 15.4 montre que l'émission peut avoir lieu non seulement sur les transitions de la bande 00^01 — 10^00, mais aussi sur celles de la bande 00^01 — 02^00 (branche *R* — 9,3 μm, branche *P* — 9,6 μm). Les transitions de la bande 00^01 — 10^00 ont un gain important, mais comme ces deux bandes ont le même niveau de départ, dans une cavité non sélective l'émission a généralement lieu sur l'une des raies rotationnelles de la branche *P* de cette bande-là (10,6 μm).

La riche structure rotationnelle, l'existence de deux bandes vibrationnelles avec inversion de population, la compétition rotationnelle, tout cela permet, à l'aide d'une cavité sélective accordable, d'obtenir une émission laser pratiquement sur n'importe quelle raie des branches *P* et *R* des bandes 00^01 — 10^00 et 00^01 — 02^00. Les gammes de fréquence correspondantes sont indiquées sur la figure 16.1. A basse pression on ne peut assurer qu'un accord discret (par raies) avec un pas correspondant à l'intervalle entre les raies. Cet intervalle est différent dans les différentes branches des différentes bandes et varie de 0,8 à 1,5 cm^{-1} dans les branches *R* et de 1,5 à 2,2 cm^{-1} dans les branches *P*. A basse pression l'épaisseur des raies est inférieure à la distance de leur séparation (rappelons que 100 MHz sont équivalents à 0,003 cm^{-1}). On peut cependant les élargir notablement par une forte augmentation de la pression du mélange gazeux. En effet, les raies rotationnelles se joignent pour former un spectre continu lorsque leur élargissement collisionnel devient comparable aux intervalles entre les raies.

En supposant que l'intervalle spectral est égal à 2 cm^{-1}, ce qui équivaut à 60 GHz, et que l'élargissement collisionnel est de 6 MHz/torr, on trouve que les raies rotationnelles se recouvrent dans les limites d'une branche

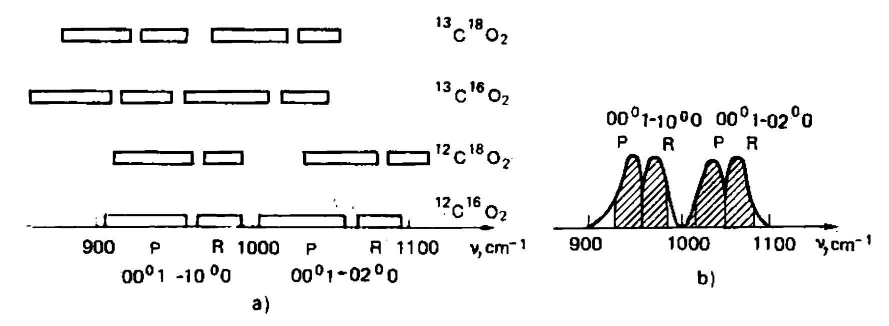


Fig. 16.1. *a*) Gammes de fréquence pour l'accord discret des lasers à molécules de CO_2 de différentes compositions isotopiques. *b*) Domaines d'accord continu du laser à CO_2 (hachurés).

d'une bande vibrationnelle à une pression de 10^4 torrs $\approx$ 14 atm. A cette pression on obtient un recouvrement pratiquement homogène des raies d'amplification. En réalité l'utilisation d'une cavité sélective à haut facteur de qualité permet de se contenter d'un recouvrement moindre. Les lasers à CO_2 à haute pression (6 à 7 atm) présentent des régions assez étendues d'accord continu de la fréquence d'émission dans les branches P et R des bandes 00^01 — 10^00 et 00^01 — 02^00 (voir fig. 16.1).

Le fonctionnement des lasers à CO_2 à haute pression pose le problème de la création de la décharge électrique qu'elle soit luminescente ou d'un autre type. A ces hautes pressions la décharge longitudinale est irréalisable dans les tubes longs. Nous savons bien que dans un plasma stationnaire les conditions d'entretien de la décharge se ramènent à ce que le produit pD reste constant. Dans les mélanges gazeux utilisés dans les lasers à CO_2 les conditions optimales correspondent à une valeur de ce produit $pD \approx 25\,\text{cm}\cdot\text{torr}$. A 10^4 torrs cela conduit à un diamètre du tube de décharge égal à 25 μm, ce qui est évidemment inadmissible. Etant donné que les hautes pressions sont intéressantes tant du point de vue de l'accord continu de la fréquence d'émission que de la grande énergie d'émission massique par suite de l'augmentation de la densité des particules émissives dans le milieu actif, on chercha à résoudre le problème de la création d'un plasma homogène dans les mélanges gazeux pour lasers à CO_2 de grands volumes et à pression élevée.

Sans nous attarder sur les questions de la physique du plasma, remarquons simplement que c'est l'apparition d'une décharge à étincelle filiforme qui s'oppose à l'obtention d'une décharge uniforme dans les gaz à haute pression sous la tension de rupture diélectrique statique ou à une tension plus grande sans qu'on utilise des tubes capillaires. La décharge luminescente qui se produit à basse pression se transforme à haute pression en une décharge à arc, ce qui compromet la génération du laser. Dans le cas d'une décharge autonome, le temps d'établissement de l'arc (ou de plusieurs arcs) est fini. De ce fait on peut en principe obtenir une décharge homogène dans n'importe quel gaz entre deux électrodes à condition que le temps de décharge soit petit devant le temps de formation de l'arc. On arrive ainsi aux décharges par impulsions et par voie de conséquence aux lasers pulsés.

Dans la structure traditionnelle du laser à gaz fondée sur l'utilisation de tubes de décharge longs, où la décharge et la circulation du gaz sont parallèles à l'axe du tube, celui-ci coïncidant avec l'axe optique de la cavité résonnante, on ne peut augmenter notablement la pression gazeuse, puisque la tension disruptive augmenterait alors à tel point qu'il faudrait utiliser des générateurs donnant en impulsion des tensions de plusieurs mégavolts. En outre, l'inductance d'un circuit de décharge de grande longueur est tellement grande que la durée de la décharge ne peut être aussi courte qu'il est nécessaire. Une augmentation du diamètre du tube de décharge ne peut

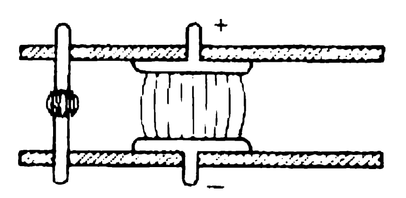


Fig. 16.2. Représentation schématique de la décharge transversale avec ionisation préalable par le rayonnement UV d'une décharge à étincelle.

résoudre le problème, puisque cela facilite la formation d'un cordon de plasma.

Le problème a été résolu en passant aux systèmes à décharge transversale. L'idée en est fort simple. Si on augmente la dimension des électrodes entre lesquelles s'effectue la décharge suivant une direction qui est parallèle à l'axe optique des lasers (fig. 16.2), la tension d'alimentation de la décharge sera appliquée perpendiculairement à l'axe optique. La tension disruptive est alors beaucoup plus faible que dans le cas d'une décharge longitudinale. En outre il devient possible d'augmenter fortement le volume utile du gaz en étendant les électrodes dans la direction qui est perpendiculaire au courant de décharge et à l'axe optique du système. Il devient alors facile de faire circuler le gaz parallèlement au courant afin d'assurer son refroidissement dans le cas d'une haute fréquence de répétition des impulsions (circulation transversale du gaz). Dans les systèmes à décharge et à circulation transversales les trois axes principaux de toute structure laser sont indépendants ; ce sont la direction de propagation de l'émission laser (axe z), la direction du courant de décharge excitant le milieu actif (axe y) et la direction de circulation du mélange gazeux formant le milieu actif (axe x).

Considérons la question de l'excitation transversale. Pour que la décharge transversale soit relativement homogène suivant sa section ainsi que suivant la longueur de la cuve du laser, il faut avant tout que l'injection d'énergie se fasse rapidement. C'est pour cela que de nombreux procédés de production de décharges instantanées ont été élaborés, par exemple les générateurs capacitifs de tensions impulsionnelles fondés sur les circuits d'Arkadiev-Marx, les transformateurs d'impulsions, etc. Il importe aussi que le gaz soit préparé à recevoir de l'énergie pendant un temps court. Le meilleur procédé est l'ionisation préalable du gaz qui doit être homogène dans tout le volume. Pour ce faire on utilise beaucoup l'irradiation du milieu actif par l'ultraviolet. On utilise comme source de rayons UV différents types d'éclateurs à étincelle, les dispositifs de décharge en plasma confiné, etc., qu'on dispose dans la cuve du laser et qu'on déclenche un peu plus tôt (quelques dizaines de nanosecondes) que la décharge principale. Le rayonnement UV dans la gamme de 200 nm provoque l'ionisation des impuretés toujours présentes dans le mélange gazeux. Lorsqu'on utilise des gaz très purs, on y introduit spécialement des composés facilement ionisables telle la tripropylamine.

Les décharges auxiliaires créent donc l'ionisation préalable d'une partie au moins de la masse gazeuse se trouvant près des électrodes principales, ce qui permet de produire une décharge homogène sur toute la surface de l'électrode. L'ionisation préalable du gaz réduit le temps nécessaire pour que les électrons qui amorcent la décharge se trouvent déjà dans l'espace de décharge lorsque la tension d'alimentation de la décharge principale sera appliquée aux électrodes. On arrive ainsi à injecter de l'énergie dans le gaz avant que se développe une décharge à arc. La vitesse de formation de l'arc dépend de l'état de surface des électrodes, de leur configuration et de leur disposition relative. Afin de retarder aussi longtemps que possible la formation de l'arc, la distance entre les électrodes doit être très exactement la même dans tout le volume embrassé par la décharge, les surfaces des électrodes doivent être minutieusement polies et doivent présenter une configuration assurant la même intensité du champ électrique dans l'espace entre les électrodes sur toute leur surface ; c'est, par exemple, la configuration de Rogovski ou de Bruce. Une condition indispensable est la faible inductance des circuits d'amenée du courant et une mise sous tension rapide.

Les lasers de ce type (voir fig. 16.2) fonctionnant à la pression atmosphérique sont appelés lasers à CO_2 à excitation transversale, à pression atmosphérique (TEA). Ayant des dimensions réduites et une construction simple, les lasers à CO_2 TEA sont des dispositifs de laboratoire de bonne qualité. L'énergie en impulsion est de 1 à 10 J, la durée de l'impulsion est de 100 à 1000 ns suivant la composition du mélange gazeux. Une grande teneur en azote non seulement contribue à augmenter la réserve d'énergie contenue dans le milieu actif, mais allonge le processus de pompage de l'état émissif 00^01 des molécules de CO_2.

A la pression atmosphérique le temps requis pour que l'énergie soit transférée de l'azote à CO_2 est de l'ordre de 100 ns ; par conséquent, lorsqu'il s'agit de durées inférieures à 100 ns, la présence de l'azote n'exerce aucun effet sur l'énergie de l'émission. Pendant les intervalles de temps de cet ordre c'est l'énergie emmagasinée dans la vibration de valence asymétrique 00^0n de la molécule CO_2 qui est émise. Lors d'une décharge rapide se réalise un processus de déclenchement de l'amplification (voir leçon 14) analogue au processus de déclenchement de Q. Dans le cas où la teneur en azote est petite, ou nulle, ou si l'on considère des intervalles de temps comparables ou inférieurs à 100 ns, l'impulsion de l'émission présente la forme caractéristique de l'impulsion de déclenchement. La présence de l'azote qui se comporte comme un réservoir d'énergie à inertie, modifie le front de descente de l'impulsion émise en faisant apparaître un second maximum quoique plus étalé que le premier. La figure 16.3 représente la forme typique de l'impulsion de rayonnement du laser à CO_2 TEA. La durée totale de l'impulsion émise atteint 1 μs et l'énergie totale de l'émission

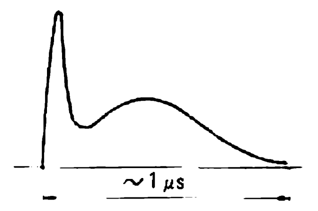


Fig. 16.3. Forme typique des impulsions émises par un laser à CO_2 TEA.

augmente de la quantité correspondante. Le premier petit pic de l'émission renferme de 1/3 à 1/2 de l'énergie totale de l'impulsion.

L'évaluation de l'énergie totale contenue dans une impulsion de rayonnement d'un laser à CO_2 TEA est facile à faire. Supposons que les conditions d'auto-excitation soient largement satisfaites. Dans ce cas l'énergie totale contenue dans l'impulsion de rayonnement est déterminée par l'énergie de la vibration de valence asymétrique des molécules de CO_2 et par l'énergie vibrationnelle des molécules de N_2 contenues dans la cavité résonnante du laser. Pendant la durée totale de l'impulsion l'énergie vibrationnelle des molécules d'azote est d'abord transmise aux molécules de CO_2 puis émise sous forme de rayonnement. L'énergie cherchée est donc donnée par

$$Q = \frac{1}{2} h\nu(n_1^* + n_2^*), \tag{16.1}$$

où n_1^* et n_2^* sont respectivement les nombres totaux de molécules excitées de CO_2 et de N_2. On peut mettre cette expression sous une forme plus commode en introduisant les coefficients $\varkappa_1$ et $\varkappa_2$ caractérisant les degrés d'excitation, i.e. les nombres moyens de quanta vibrationnels du mode ν_3 revenant respectivement à une molécule de CO_2 et de N_2 ; en passant du nombre de particules aux pressions partielles et en remarquant que pour les gaz parfaits $PV = NkT$, on trouve

$$Q = \frac{1}{2} \frac{\varkappa_1 + c_2\varkappa_2}{1 + c_2 + c_3} \frac{h\nu}{kT} VP, \tag{16.2}$$

où P est la pression totale du mélange gazeux contenu dans la cuve du laser, V le volume utile du laser, c_2 et c_3 sont les concentrations d'azote et d'hélium respectivement rapportées à la concentration de CO_2 dans le mélange utilisé ($CO_2 : N_2 : He = 1 : c_2 : c_3$). Le produit de la pression par le volume a la dimension de l'énergie. Si l'on mesure V en litres, P en atmosphères et Q en joules, l'énergie réduite est donnée par la formule simple

$$q = \frac{Q}{VP} = 50 \frac{\varkappa_1 + c_2\varkappa_2}{1 + c_2 + c_3} \frac{h\nu}{kT} \ J/(\mathrm{l \cdot atm}). \tag{16.3}$$

Lorsque la température diminue, l'énergie de sortie massique augmente. A la température ordinaire $h\nu/kT \approx 4$. Dans une décharge convenablement

réglée on obtient $\varkappa_1 \approx \varkappa_2 = 0{,}4$ à $0{,}5$. Dans ces conditions, pour un mélange gazeux 1 : 2 : 3, la valeur de l'énergie de sortie massique est

$$q = 40 \text{ à } 50 \text{ J/(l·atm)}, \tag{16.4}$$

résultat en bon accord avec les résultats expérimentaux. Notons que les premier et deuxième termes figurant dans les numérateurs des formules (16.2) et (16.3) représentent les parts respectives de l'énergie émise dans le premier pic et dans la partie de descente de l'impulsion du laser à CO_2 TEA (voir fig. 16.3).

L'évaluation donnée ci-dessus est correcte puisque, à la pression atmosphérique, le temps de la relaxation rotationnelle est de 0,1 ns, le temps d'établissement de l'équilibre dans un mode vibratoire d'une molécule de CO_2 est également de 0,1 ns, tandis que la relaxation de vibration-translation d'une molécule de CO_2 évolue via la vibration 01^10 durant 500 ns.

Pour conclure la discussion relative aux lasers à CO_2 TEA remarquons que pour ces lasers, par suite de l'élargissement collisionnel qui est de l'ordre de 3 GHz (ou 0,1 cm^{-1}), la raie d'amplification est assez large, ce qui permet d'obtenir des impulsions d'une durée de l'ordre de 1 ns en utilisant le procédé de verrouillage des modes. Notons aussi que ces lasers ont tendance à subir un verrouillage passif des modes, ce qui a pour effet de faire apparaître des irrégularités dans la durée des impulsions de rayonnement d'environ 1 ns. La figure 16.3 représente les résultats obtenus avec une petite résolution temporelle.

La mise en œuvre d'une double décharge pour l'excitation des lasers à CO_2 utilisant de grands volumes gazeux à la pression atmosphérique fournit de bons résultats grâce à l'ionisation préalable du gaz à proximité de la cathode. Le travail de sortie des électrons de la surface de la cathode s'en trouve diminué, ce qui contribue à l'homogénéité de la décharge. Mais comme le nombre d'électrons libérés par l'ionisation préalable est petit ($\leq 10^9$ cm^{-3}), le mécanisme d'avalanche prédomine dans la décharge qui a toujours tendance à produire un arc. Cela limite la quantité d'énergie qu'on peut injecter dans le volume actif du laser. Le caractère autonome de la décharge, où une seule et même source de haute tension assure la disruption de l'intervalle gazeux (ionisation du gaz contenu dans cet intervalle) et l'introduction de l'énergie dans cet intervalle (échauffement du canal de décharge par le champ électrique appliqué), s'oppose à la réalisation de lasers à CO_2 TEA de grand volume et ne permet pas de dépasser notablement la pression atmosphérique.

L'utilisation d'une décharge semi-autonome dans laquelle l'ionisation du gaz est assurée par un agent extérieur, par un faisceau d'électrons rapides par exemple, et l'énergie est injectée dans les meilleures conditions dans un milieu déjà ionisé, permet de réaliser une excitation homogène du

mélange gazeux sans que celui-ci soit soumis à une décharge disruptive, i.e. pour des valeurs $E/p < 10$ kV/(cm·atm). Nous savons déjà que la valeur $E/p = 3$ kV/(cm·atm) est optimale pour l'excitation du milieu. Si la densité du nombre d'électrons est de 10^{13} à 10^{14} $cm^{-3} \cdot atm^{-1}$, on réalise une injection efficace d'énergie dans le gaz de travail et un haut degré d'excitation des vibrations de l'azote et des niveaux 00^0n des molécules CO_2. La source extérieure d'ionisation rend le mélange gazeux apte à recevoir de l'énergie, linéarise sa caractéristique courant-tension et permet d'exciter de façon contrôlée le volume actif du laser. C'est à l'aide de décharges semi-autonomes qu'on arrive à faire fonctionner des lasers à CO_2 à haute pression avec accord continu de leur fréquence d'émission ; dans le cas de lasers fonctionnant à la pression atmosphérique, la mise en œuvre de la décharge semi-autonome a permis d'obtenir de très grandes énergies d'émission.

Avant de passer à l'étude des procédés non électriques de création de l'inversion de population dans les lasers à CO_2, il convient d'examiner une circonstance de très haute importance dont on doit tenir compte dans l'étude des lasers à CO_2. Il s'agit de la résistance radiative des matériaux optiques utilisés pour la construction et dans l'exploitation des lasers (fenêtres, miroirs, lentilles, prismes, etc.). En fait cette question sort du cadre de notre cours puisqu'il s'agit du problème de l'interaction des rayonnements lasers avec les substances. Mais le laser à CO_2 produit une émission tellement intense qu'on doit tenir compte des propriétés des matériaux, même si on les considère comme de simples paramètres phénoménologiques, dans l'élaboration de ce type de laser.

Les meilleurs matériaux transparents pour la fabrication des fenêtres des cuves à gaz des lasers à CO_2 sont les cristaux des halogénures alcalins tels que NaCl, KCl, les semi-conducteurs à grande largeur de bande interdite tels que ZnSe, les cristaux à base de composés du thallium tels que IRTRAN-5 et IRTRAN-6. En régime d'impulsion d'une durée de 0,1 à 1 μs ces cristaux supportent sans altération une densité d'énergie de rayonnement de 10 à 20 J/cm^2. Pour arriver à une estimation grossière il suffit d'égaler l'énergie que peut émettre la substance active (formule (16.2)) à la densité d'énergie que peut supporter sans dommage le matériau de la fenêtre. On trouve ainsi la condition simple

$$pl = 2 \text{ à } 4 \text{ m}\cdot\text{atm} \tag{16.5}$$

qui impose une limite à la longueur l du milieu actif du laser et à la pression p du milieu gazeux. La résistance optique des faces réfléchissantes des miroirs métalliques et du milieu actif du laser est plus grande, de sorte que c'est la résistance des matériaux transparents qui impose une limite à la densité de l'énergie de rayonnement.

En régime continu ou en régime d'impulsions périodiques, bien avant

qu'apparaissent des altérations irréversibles des matériaux, c'est la question des distorsions thermo-optiques qui préoccupe l'ingénieur. D'une façon générale on peut admettre que les matériaux modernes permettent de travailler en régime continu avec des intensités de l'ordre de plusieurs kilowatts par centimètre carré.

Examinons maintenant les procédés de création du milieu actif des lasers à gaz qui sont essentiellement différents de ceux qui ont été étudiés jusqu'ici.

Considérons d'abord les lasers à gaz dynamiques. Dans ces lasers l'énergie d'émission provient de l'énergie themique d'un gaz moléculaire échauffé en équilibre à une température élevée. A l'état d'équilibre thermique il ne peut y avoir d'inversion de population à aucune température, puisque l'énergie thermique est répartie uniformément entre tous les degrés de liberté des molécules, y compris entre les degrés de liberté vibrationnels. Mais comme les vitesses de relaxation des modes vibrationnels des molécules polyatomiques peuvent être différentes, dans le cas où l'on fait varier brusquement les conditions d'équilibre les différents modes parviendront au nouvel état d'équilibre au cours d'intervalles de temps différents. Il s'ensuit que lorsque les paramètres thermodynamiques du gaz varient lors du passage d'un état d'équilibre à un autre état d'équilibre, il peut exister un intervalle de temps durant lequel le gaz se trouvant hors d'équilibre thermodynamique peut présenter une inversion de population si la relaxation du niveau de plus grande énergie évolue plus lentement. C'est ce qu'on observe dans le cas des vibrations 00^01 (niveau laser supérieur) et des vibrations 10^00—02^00—01^10 (niveau laser inférieur effectif) des molécules CO_2. On peut donc réaliser une inversion de population aux dépens de l'énergie d'un gaz chaud lors de son refroidissement rapide grâce à la relaxation vibrationnelle de ses molécules.

Le procédé le plus simple assurant un refroidissement rapide d'importantes masses gazeuses en mouvement consiste à provoquer l'écoulement supersonique du gaz chaud et comprimé dans le vide. La détente supersonique doit abaisser la température et la pression du gaz au cours d'un temps qui est petit devant la durée de vie du niveau laser supérieur, mais qui est grand devant la durée de vie du niveau laser inférieur. Pour cela la détente du gaz doit s'effectuer à travers une tuyère supersonique ayant une faible hauteur de section critique (0,3 à 1,0 mm) afin que les paramètres du mélange gazeux varient sur une longueur de 1 à 2 cm dans le sens de l'écoulement. A la vitesse supersonique (M = 4) d'écoulement la population du niveau supérieur reste la même que lorsque le gaz était chaud, tandis que celle du niveau inférieur correspond à la basse température du gaz détendu. Pour que ce régime puisse être réalisé, il faut ajouter de l'azote qui, possédant une grande durée de vie, assure le pompage du niveau 00^01 des molécules CO_2. Ces considérations sont illustrées par la figure 16.4.

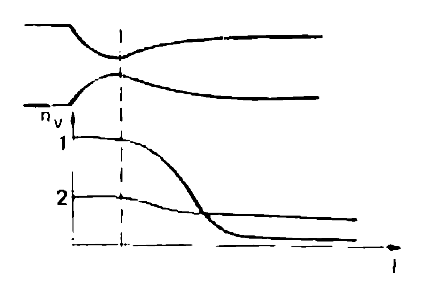


Fig. 16.4. Illustration du principe du laser à gaz dynamique. En haut — profil de la tuyère, en bas — courbes de variation de la population des niveaux en fonction de la distance (unités arbitraires) ; *1* — niveau inférieur, *2* — niveau supérieur. La droite en traits discontinus indique l'emplacement de la section critique de la tuyère.

Il est évident que l'inversion ne subsiste que sur une longueur finie à partir de la sortie de la tuyère et c'est dans cette région que doivent être placés les miroirs délimitant la cavité résonnante. On conçoit que le résonateur d'un laser à gaz dynamique fonctionne dans des conditions très spéciales, vu que la substance active y est introduite à très grande vitesse perpendiculairement à son axe optique.

Dans les lasers à gaz dynamiques l'énergie thermique des molécules gazeuses est directement transformée en énergie d'un rayonnement électromagnétique cohérent. Ce laser peut donc être considéré comme une machine thermique dont le rendement dépend de la différence des températures du fluide moteur. Or on ne peut élever très haut la température initiale par suite du risque de dissociation de CO_2 et l'on ne peut l'abaisser beaucoup pour éviter que le CO_2 se condense. Ces circonstances imposent une limite au rendement des lasers gazodynamiques, qui dans les conditions réelles ne représente que quelques pour cent.

Le principal avantage des lasers à gaz dynamiques est la grande puissance de sortie en régime continu, atteignant le mégawatt. Cela tient à ce que l'écoulement gazeux supersonique peut transporter un grand nombre de molécules excitées, par unité de temps, à travers la cavité du laser. La construction de ces lasers est naturellement fort compliquée.

Le gaz qui a traversé la cavité résonnante du laser est généralement rejeté dans l'atmosphère. Dans le cas du mélange généralement utilisé CO_2 : N_2: He dans les lasers de grande puissance, le rejet dans l'atmosphère équivaudrait à une perte irrécupérable d'hélium. C'est pour cela qu'on remplace l'hélium par la vapeur d'eau à une concentration de 1 à 2 % qui favorise le dépeuplement collisionnel du niveau inférieur 01^10. Une plus grande concentration d'eau accélère la relaxation du niveau 00^01 des molécules CO_2 et désactive ainsi l'azote moléculaire qui est le principal porteur de l'énergie d'excitation, ce qui a pour effet d'abaisser le rendement du laser.

L'échauffement du gaz à l'aide d'une source de chaleur extérieure est irrationnel. Dans les grandes installations on obtient le mélange de composition définie porté à 1300-1400 K par combustion dans l'air atmosphérique de carburants convenablement choisis et dosés. Ainsi se trouve une nouvelle fois confirmé le fait que les lasers à gaz dynamiques transforment directe-

ment l'énergie thermique en énergie du rayonnement électromagnétique cohérent.

La méthode gazodynamique de création d'une inversion de population est surtout appliquée aux lasers à CO_2. De nombreux procédés ont été élaborés pour échauffer le gaz ; pour contrecarrer la dissociation de CO_2 à haute température, on n'échauffe que l'azote et on n'y ajoute le CO_2 qu'après que l'azote aura subi une excitation vibrationnelle par traversée de la section critique de la tuyère et aura été refroidi par « translation ».

Il est clair que la méthode gazodynamique peut être appliquée aux molécules qui, étant brusquement refroidies, conservent la haute température vibrationnelle du niveau vibrationnel de plus grande énergie et admettent une thermalisation rapide du niveau vibrationnel inférieur (fig. 16.4); ce type de molécules peut être mélangé à des molécules d'espèces différentes.

Dans les lasers moléculaires utilisant la décharge électrique on sépare les voies de relaxation parmi les différents modes vibrationnels et l'on réalise l'excitation du mode de grande durée de vie soit directement par choc électronique, soit par le transfert de l'énergie d'excitation accumulée dans un gaz porteur d'énergie qu'on excite par choc électronique. Dans les lasers à gaz dynamiques l'excitation est réalisée à l'aide de l'échauffement du gaz à un état d'équilibre thermodynamique que, suivi d'un écoulement supersonique de ce gaz, conduit à une distribution hors d'équilibre des populations résultant de vitesses de relaxation différentes suivant les voies de relaxation distinctes.

Pour l'excitation du gaz on peut utiliser aussi des réactions chimiques exothermiques, une partie de l'énergie de réaction étant dégagée sous la forme d'énergie vibrationnelle des molécules. Si cette énergie vibrationnelle est ensuite transmise à des molécules CO_2 par exemple, le laser à CO_2 chimique qui en résulte ressemblera à de nombreux points de vue au laser à CO_2 dynamique à forte teneur en azote. On doit remarquer cependant que l'énergie d'excitation d'origine chimique peut être utilisée directement pour la production de milieux actifs pour les lasers. C'est pour cela que les lasers chimiques qui constituent toute une classe de lasers sont intéressants en eux-mêmes. Dans l'étude des lasers chimiques il importe de ne pas perdre de vue que du point de vue des principes généraux leur nature est semblable à celle des lasers à gaz dynamiques, puisque le passage du milieu actif d'un état d'équilibre à un autre état d'équilibre évolue de telle sorte que pendant un certain intervalle de temps fini le système existe dans un état hors d'équilibre avec inversion de population.

Notons encore que dans les lasers chimiques se trouve réalisée la transformation directe de l'énergie chimique en énergie du rayonnement électromagnétique cohérent. L'intérêt que suscitent ces lasers tient à ce qu'il existe beaucoup de réactions chimiques libérant d'énormes quantités d'énergie.

Dix-septième leçon. LES LASERS CHIMIQUES

Réactions exothermiques et énergie vibrationnelle. Processus de relaxation de vibration-translation, de vibration-vibration, de rotation-translation. Inversion totale et partielle. Taux de pompage chimique. Réactions en chaîne. Rendement d'amorçage et rendement chimique. Lasers chimiques fonctionnant en régime d'impulsion et en régime continu. Caractéristiques des lasers. Lasers à photodissociation de composés iodés.

On appelle lasers chimiques les lasers où l'inversion de population est créée dans le milieu actif grâce à une distribution hors d'équilibre de l'énergie libérée par la réaction entre les produits de celle-ci sur le lieu de la réaction. Autrement dit, l'émission des lasers chimiques résulte directement de la réaction chimique et non pas d'un effet secondaire de cette dernière, tel qu'un échauffement ou une croissance explosive de la pression, comme c'est le cas dans les lasers gazodynamiques alimentés par l'énergie d'une réaction chimique (combustion stationnaire ou explosive d'un combustible).

L'émission des lasers chimiques est un effet inverse de l'effet photochimique où la réaction chimique résulte directement de l'absorption de photons par les atomes ou les molécules et non pas d'un effet secondaire de la lumière, tel l'échauffement des réactifs résultant de l'absorption de la lumière. On utilise la stimulation photochimique pour faire évoluer les réactions endothermiques. De toute évidence l'élaboration des lasers chimiques doit faire appel uniquement aux réactions exothermiques.

L'intérêt que manifestent les chercheurs pour les lasers chimiques est déterminé par ce que nombre de réactions chimiques exothermiques libèrent de grandes quantités d'énergie par unité de masse des réactifs ; citons des exemples bien connus : les carburants, les explosifs, etc.

L'étude des réactions évoluant en phase gazeuse montre que les degrés de liberté vibrationnels sont des accumulateurs très efficaces de l'énergie libérée par les réactions chimiques. Notons tout d'abord que dans les réactions chimiques moléculaires se produit un réarrangement des liaisons chimiques des molécules, certaines liaisons se détruisent, d'autres s'établissent et dans celles qui subsistent de nouveaux noyaux atomiques sont introduits. Or nous savons que les modes vibrationnels des molécules sont localisés sur les liaisons dans la structure des molécules. Il s'ensuit que dans toute réaction exothermique la libération d'énergie est liée à la restructuration des liaisons chimiques résultant de la réaction ; cette énergie est accumulée sous forme d'énergie de vibration des molécules. On notera d'autre part qu'en phase gazeuse la relaxation de vibration-translation évolue assez lentement.

Il résulte de ces considérations que le fonctionnement des lasers chimiques se fonde sur les transitions entre les niveaux vibrationnels des molécules. Il importe donc de savoir, d'une part, comment se répartit l'énergie

chimique libérée dans les réactions entre les niveaux vibrationnels des molécules, et, d'autre part, dans quelles réactions et dans quelles molécules peut se réaliser une répartition inversée de cette énergie.

Le cas le plus simple est illustré par la réaction de substitution

$$A + BC \rightarrow AB\ (V) + C = AB^* + C. \quad (17.1)$$

Un grand nombre de réactions de ce type a fait l'objet d'études détaillées. Par exemple, en utilisant les méthodes spectroscopiques, on a trouvé que dans la réaction

$$F + H_2 \rightarrow HF^* + H \quad (17.2)$$

le rapport de l'énergie vibrationnelle à l'énergie totale libérée par la réaction est $E_{vib}/E_{tot} = 0{,}7$. Les occupations relatives des niveaux $V = 1$, $V = 2$, $V = 3$ sont respectivement égales à 0,31 ; 1,0 ; 0,48. On retrouve une situation analogue dans les réactions $F + D_2$, $H + F_2$, $H + Cl_2$, $H + Br_2$, etc. En règle générale, dans toutes les réactions de formation des halogénures d'hydrogène selon l'équation (17.1), la substitution exothermique s'accompagne d'une inversion de population.

L'inversion vibrationnelle complète

$$N_{V'}/g_{V'} > N_V/g_V, \quad V' > V, \quad (17.3)$$

qui s'est produite lors du réarrangement de la liaison intramoléculaire ne peut subsister que pendant un temps fini. Les processus de relaxation obligent le système hors d'équilibre à retourner à l'état d'équilibre caractérisé par une distribution boltzmannienne des populations et une température correspondant à l'énergie libérée dans la réaction. On sait que toute molécule possède des degrés de liberté vibrationnels, rotationnels et translationnels. La thermalisation de l'énergie libérée dans une réaction exothermique implique son équipartition entre tous les degrés de liberté de la molécule. Cela signifie qu'à l'équilibre toutes les formes de mouvement de la molécule sont caractérisées par la même température T. L'établissement de cet équilibre est assuré par les chocs en phase gazeuse entre les molécules. Nous savons que lors des chocs c'est l'échange quasi résonant d'énergie qui est le mécanisme de thermalisation le plus efficace. Dans le cas de la relaxation de vibration-translation ($V - T$) on a

$$h\nu_{vib} > kT, \quad (17.4)$$

et les conditions de quasi-résonance ne sont pas satisfaites. C'est pour cela que la relaxation $V - T$ n'aboutit qu'à la suite de plusieurs centaines ou plusieurs milliers de chocs en phase gazeuse, et par suite le temps de relaxation est grand dans ce cas.

Lors des chocs entre les molécules il peut se produire aussi un échange de quanta d'énergie vibrationnelle $h\nu_{vib}$ entre les niveaux vibrationnels pos-

sédant des nombres quantiques vibrationnels V différents. Si l'anharmonicité de la molécule est faible, le déficit d'énergie lors de ces échanges est également faible (voir (15.7)) :

$$2\chi(V + 1) < kT, \tag{17.5}$$

en conséquence, la relaxation ($V - V$) (de vibration-vibration) évolue pratiquement à la vitesse des chocs en phase gazeuse. Dans le processus de relaxation $V - V$ le nombre total de quanta vibrationnels se conserve, ce qui signifie que l'énergie fournie par la réaction chimique au système de molécules sous forme d'énergie vibrationnelle se conserve sous cette forme, et c'est sa distribution entre les niveaux qui change. Si l'anharmonicité des molécules est faible, la distribution qui résulte de la relaxation $V - V$ est peu différente de la distribution de Boltzmann et se caractérise par une certaine température vibrationnelle efficace $T_V \neq T$. Il va de soi que l'inversion vibrationnelle complète (17.3) s'évanouit.

La relaxation $V - V$ s'accompagne d'une relaxation $R - T$ (de rotation-translation) qui conduit à l'équilibre des degrés de liberté rotationnels et translationnels qui, à la fin du processus, sont caractérisés par une température unique T. L'établissement rapide de l'équilibre dans le réservoir d'énergie de rotation-translation résulte des échanges d'énergie accompagnant les chocs correspondants et présentant un caractère quasi résonant du fait de la petitesse de l'énergie rotationnelle :

$$BJ(J + 1) < kT. \tag{17.6}$$

Les sections des relaxations $V - V$ et $R - T$ sont peu différentes de la section gazocinétique. Généralement la relaxation $R - T$ est un peu plus rapide que la relaxation $V - V$, mais comme la relaxation $V - T$ est beaucoup plus lente, comme on l'a déjà signalé, pendant un temps long correspondant à des centaines ou à des milliers d'intervalles de temps entre les chocs successifs en phase gazeuse, $T_V \neq T$. Si l'on utilise des réactions de la forme (17.1) dont le caractère exothermique se manifeste surtout dans la libération d'énergie vibrationnelle, on aura pendant un temps relativement long

$$T < T_V. \tag{17.7}$$

Dans ces conditions peut se réaliser ce que l'on appelle l'inversion partielle. Pour le niveau V', J' disposé au-dessus du niveau V, J, la condition de l'inversion partielle s'écrit sous la forme

$$N_{V',J'}/g_{V',J'} > N_{V,J}/g_{V,J}. \tag{17.8}$$

A la différence de la condition (17.3) d'inversion complète cette condition n'est vérifiée que pour certaines valeurs de J et J'.

Examinons cette question plus en détail. La distribution de Boltzmann parmi les niveaux de vibration-rotation aux températures de quasi-équilibre vibrationnelle T_V et rotationnelle T se présente sous la forme suivante :

$$\frac{N_{V,J}}{g_{V,J}} = \frac{1}{\Sigma_V} \exp\left(-\frac{E_V}{kT_V}\right) \frac{1}{\Sigma_r} \exp\left(-\frac{BJ(J+1)}{kT}\right), \qquad (17.9)$$

où l'énergie $E_{V,J}$ du sous-niveau rotationnel J du niveau vibrationnel V est posée égale à

$$E_{V,J} = E_V + BJ(J+1) \qquad (17.10)$$

(cette expression est valable pour les molécules diatomiques ou linéaires), tandis que Σ_V et Σ_r désignent respectivement les sommes statistiques vibrationnelle et rotationnelle. La condition de l'inversion partielle est satisfaite lorsque

$$\frac{T_V}{T} > \frac{E_{V'} - E_V}{B} \frac{1}{J(J+1) - J'(J'+1)}, \quad J' < J. \qquad (17.11)$$

Les règles de sélection s'appliquant aux transitions de vibration-rotation $\Delta V = \pm 1$; $\Delta J = 0, \pm 1$ permettent de simplifier l'expression (17.11) à l'aide des relations $E_{V'} - E_V = h\nu$, $J = J' + 1$:

$$\frac{T_V}{T} > \frac{h\nu}{2BJ}. \qquad (17.12)$$

Cela signifie que l'inversion partielle ne peut se manifester que dans la branche P (pour le sous-niveau rotationnel du niveau laser supérieur la valeur de J est d'une unité inférieure à la valeur de J pour le sous-niveau rotationnel du niveau inférieur) et pour des valeurs de J du niveau inférieur déterminées par la réserve d'énergie vibrationnelle, i.e. par la valeur de T_V :

$$J > \frac{h\nu}{2B} \frac{T}{T_V}. \qquad (17.13)$$

Dans le cas d'une inversion vibrationnelle complète, l'amplification peut avoir lieu sur les trois branches P, Q et R.

La possibilité d'une inversion partielle est une particularité importante des systèmes moléculaires. Dans les spectres $V - R$ l'inversion peut être créée non seulement grâce à la différence d'occupation des niveaux vibrationnels, car un rôle notable revient à la distribution des populations du niveau vibrationnel parmi les sous-niveaux rotationnels. Une situation très particulière apparaît pour les transitions de la branche P évoluant à l'absorption du sous-niveau $J + 1$ du niveau vibrationnel inférieur au sous-niveau J du niveau vibrationnel supérieur, et à l'émission du sous-neveau $J - 1$ du niveau vibrationnel supérieur au sous-niveau J du niveau vibrationnel inférieur.

Considérons pour simplifier la situation suivante : les populations de deux niveaux vibrationnels V et $V + 1$ sont égales. Il n'y a pas d'inversion complète. Les distributions des populatione entre les sous-neveaux de ces deux niveaux vibrationnels sont identiques et boltzmanniennes. L'occupation du sous-niveau $J - 1$ est plus importante que celle du sous-niveau J. A son tour l'occupation du sous-niveau J est plus importante que celle du sous-niveau $J + 1$, etc. Les populations des niveaux vibrationnels V et $V + 1$ étant égales, leurs sous-niveaux J_V et J_{V+1} ont des populations égales. Les populations des sous-niveaux $(J - 1)_V$ et $(J - 1)_{V+1}$ sont elles aussi égales et ainsi de suite. Il s'ensuit que le sous-niveau $(J - 1)_{V+1}$ possède une population plus forte que le sous-niveau J_V. Le sous-niveau du niveau supérieur qui est disposé plus bas est le niveau inférieur dans l'échelle des énergies rotationnelles, puisque sur son niveau vibrationnel il possède une moindre énergie rotationnelle. Mais comme ce sous-niveau se trouve plus haut dans l'échelle des énergies vibrationnelles, de ce fait dans le cas des transitions $V - R$ de la branche P il peut exister une inversion qu'on a appelée plus haut inversion partielle. Généralement on désigne par le symbole J le sous-niveau du niveau vibrationnel inférieur. En l'absence d'inversion des populations vibrationnelles de la transition $V + 1 \to V$ une inversion partielle ne peut concerner que les transitions $J - 1 \to J$, i.e. uniquement dans la branche P pour les valeurs de J données par la formule (17.13).

Nous voyons ainsi que tant que la relaxation $V - V$ n'est pas terminée, il existe une inversion vibrationnelle complète déterminée par la distribution de l'énergie de l'acte chimique élémentaire exothermique entre les états vibrationnels des molécules des produits de la réaction. Tant que la relaxation $V - T$ n'est pas terminée, il existe une inversion rotationnelle partielle dans la branche P. On distingue facilement ces deux sortes d'inversion par étude du spectre des fréquences d'émission.

Lorsque l'inversion est réalisée, toutes les propriétés des lasers chimiques coïncident avec celles de tous les autres lasers à gaz moléculaires ; cette conclusion est d'ailleurs valable quel que soit le procédé de création du milieu actif.

La principale question qui se pose avec les lasers chimiques est le choix de la réaction chimique créant une inversion de population.

Considérons un modèle simple (fig. 17.1). Posons que le niveau 2 se peuple à un taux W lors de la réaction chimique. Dans l'approximation de deux niveaux les équations d'évolution se présentent sous la forme

$$\frac{dn_2}{dt} = W - \left(\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_{21}}\right)n_2, \quad \frac{dn_1}{dt} = \frac{n_2}{\tau_{21}} - \frac{n_1}{\tau_1}. \qquad (17.14)$$

La signification du temps τ est explicitée par la figure 17.1. La valeur sta-

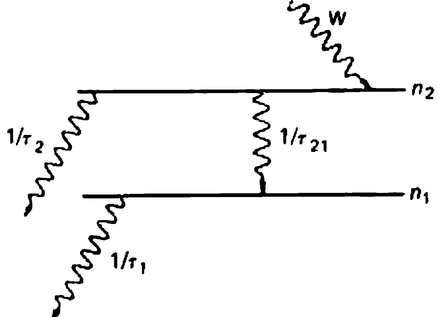


Fig. 17.1. Schéma illustrant la cinétique du pompage d'un laser chimique.

tionnaire de la différence des populations

$$n_2 - n_1 = W\tau_2 \frac{\tau_{21} - \tau_1}{\tau_2 + \tau_{21}} \qquad (17.15)$$

atteint sa plus grande valeur

$$n_2 - n_1 = W\tau_{\text{eff}}, \qquad (17.16)$$

où $1/\tau_{\text{eff}} = 1/\tau_2 + 1/\tau_{21}$ lorsque $\tau_1 \ll \tau_{21}$. Cette valeur maximale doit être supérieure à une certaine valeur de seuil n_{seuil} de l'émission. Il s'ensuit que la vitesse du pompage chimique doit être supérieure à une certaine valeur dépendant de la densité de l'inversion de seuil et du temps de relaxation efficace :

$$W > n_{\text{seuil}}/\tau_{\text{eff}}. \qquad (17.17)$$

Supposons maintenant que la vitesse du pompage chimique est égale à la vitesse de la réaction chimique. Posons que la réaction considérée se laisse écrire sous la forme

$$\text{A} + \text{B} \rightarrow \text{AB}^*. \qquad (17.18)$$

La vitesse d'obtention du produit AB* dépend alors du produit des concentrations [A] et [B] des réactifs initiaux par la constante de vitesse K de la réaction :

$$W = [\text{A}][\text{B}]K. \qquad (17.19)$$

La constante K obéit à la loi d'Arrhenius :

$$K = K_0 \exp(-E_a/kT), \qquad (17.20)$$

où E_a est l'énergie d'activation de la réaction et le facteur K_0 est une quantité qui dépend peu de la température et qui est toujours plus petite que la quantité $\langle \sigma v \rangle$ dépendant du nombre de chocs en phase gazeuse :

$$K_0 \leqslant \langle \sigma v \rangle. \qquad (17.21)$$

A 300 K et avec les valeurs usuelles de l'énergie d'activation ($E_a \approx 10$ à 20 kcal/mole) la constante de vitesse de la réaction est très petite ($K \approx 10^{-18}$ à 10^{-26} cm^3/s), de sorte que la condition (17.17) ne peut être vérifiée. Pour que le pompage chimique puisse avoir lieu il faut utiliser des réactions ayant une énergie d'activation de plusieurs kilocalories par mole (rappelons que 1 eV équivaut à 23 kcal/mole). Seules les réactions auxquelles participent des atomes ou des radicaux libres peuvent avoir des énergies d'activation aussi faibles. La préparation d'atomes libres chimiquement actifs ou celle de radicaux libres exige de très grandes dépenses d'énergie. L'énergie libérée à 300 K par des réactions de radicaux libres est du même ordre de grandeur que la quantité d'énergie consommée dans la préparation de ces radicaux.

La question du pompage chimique pose le problème d'une réduction de l'énergie consommée par la préparation des radicaux qui soit assez importante pour que l'amorçage d'une réaction de la forme (17.18) n'exige pas une grande dépense d'énergie. Dans ces conditions l'énergie du rayonnement émis, qui est approximativement égale à l'énergie libérée par la réaction chimique, serait notablement plus grande que l'énergie d'amorçage de la réaction. Dans le cas limite idéal on pourrait obtenir un effet laser purement chimique n'exigeant aucune dépense d'énergie pour l'amorçage de la réaction.

Le problème posé est résolu par la mise en œuvre des réactions chimiques en chaîne et auto-entretenues. Dans ces réactions chaque centre chimiquement actif (radical, atome) est reproduit au cours de la réaction. L'utilisation répétée des radicaux permet de transformer en rayonnement la réserve d'énergie chimique contenue dans les produits initiaux. Dans une réaction en chaîne l'utilisation répétée des radicaux peut compenser les dépenses d'énergie occasionnées par la création du petit nombre de radicaux nécessaires à l'amorçage de la réaction en chaîne.

En effet pour mettre en train une réaction de la forme (17.1) ou (17.18) il faut disposer d'atomes (ou de radicaux) A et (ou) B. Dans le cas le plus simple on dispose de molécules diatomiques A_2 et B_2. Le produit AB peut être obtenu dans la réaction

$$A_2 + B_2 \rightarrow 2AB. \qquad (17.22)$$

Mais cette réaction directe possède une grande énergie d'activation et évolue à une vitesse insuffisante pour produire une inversion supérieure au seuil.

Soumettons maintenant les produits gazeux initiaux à une excitation extérieure, par exemple à un flash intense d'un rayonnement UV dur. Sous l'action de cette irradiation une partie des molécules subissent une dissociation

$$A_2 + h\nu_{UV} \rightarrow 2A, \qquad (17.23)$$

ce qui rend possible l'amorçage d'une réaction en chaîne rapide :

$$A + B_2 \to AB^* + B,\ B + A_2 \to AB + A,\ A + B_2 \to AB^* + B,\ \ldots \quad (17.24)$$

Le second acte de (17.24) rétablit la situation initiale et la formation du produit AB* désiré se poursuit sans excitation extérieure. Or la réaction en chaîne réelle ne se poursuit pas indéfiniment, car les centres actifs ne subsistent que pendant un certain temps après quoi ils disparaissent. Dans l'étude des réactions en chaîne on fait appel à la notion de longueur chimique ν_{ch} de la chaîne qui est définie comme le rapport de la concentration du produit moléculaire AB à la concentration des radicaux initiaux A qui ont amorcé la réaction.

En fait la longueur ν_{ch} est déterminée par le rapport de la vitesse de l'acte le plus lent de la chaîne au taux de disparition des centres actifs. Plus la chaîne est longue, plus la part de l'énergie du premier amorçage est petite dans le bilan énergétique général de la réaction et plus le rendement du laser conçu serait grand. Pour que l'effet laser puisse se manifester, l'existence du produit de la réaction AB ne suffit pas, on a besoin de molécules excitées AB*. Comme les processus de relaxation sont omniprésents, l'excitation disparaît progressivement, ce qui implique la disparition de l'inversion. Il faut donc caractériser le fonctionnement du laser chimique à l'aide de la notion de longueur laser ν_l de la chaîne définie par le rapport du taux de production de molécules excitées AB* au taux de décroissance de l'inversion par suite de la relaxation. En principe les causes de la relaxation de l'inversion sont les mêmes que celles de la disparition des radicaux, ce sont les collisions en phase gazeuse. Mais comme la relaxation évolue plus vite, $\nu_l < \nu_{ch}$, et c'est la longueur laser de la chaîne qui détermine le rendement du laser.

Soit E_d l'énergie qui doit être fournie pour créer le radical initial. Posons que chaque radical assume ses fonctions ν_l fois. Les dépenses d'énergie de la source d'amorçage (dont le rendement est η_{am}) rapportées à chaque acte d'émission sortante sont égales à $E_d/\eta_{am}\nu_l$. Si l'énergie libérée lors de l'acte élémentaire de formation d'une molécule AB* est égale à ΔH et si la fraction η_r de cette énergie est investie dans la vibration utile de la molécule AB, chaque acte élémentaire donne lieu à l'émission d'une énergie égale à $\Delta H\eta_r$, de sorte que le rendement du processus d'amorçage du laser chimique, qu'on appelle rendement externe du laser, est égal à :

$$\eta_0 = \nu_l\eta_{am}\eta_r\Delta H/E_d. \quad (17.25)$$

Si la longueur laser de la chaîne est importante, ce rendement peut être notablement supérieur à 100 %. C'est en cela que réside le principal avantage des lasers chimiques.

A côté du rendement du processus d'amorçage on définit aussi le rendement chimique η_{ch} du laser ; par définition celui-ci est égal au rapport de

l'énergie Q_l de l'émission laser à la réserve totale d'énergie chimique Q_{ch} dans le système

$$\eta_{ch} \equiv Q_l/Q_{ch}. \tag{17.26}$$

La connaissance de la quantité η_{ch} est précieuse pour la raison que l'énergie chimique est loin d'être gratuite, puisqu'elle est contenue dans les produits initiaux dont la fabrication peut être fort coûteuse.

Il ressort de ce qui précède que

$$Q_l = \nu_l \eta_r \Delta H [A]_0, \tag{17.27}$$

où $[A]_0$ est le nombre initial de radicaux à l'amorçage.

La réserve d'énergie chimique dans le système dépend de la quantité d'énergie libérée lors de la formation d'une molécule AB* et du nombre de ces molécules pouvant être formées dans le mélange initial d'une composition donnée. Ce dernier nombre est égal au nombre de molécules du mélange initial qui font partie du produit moléculaire final dans une proportion stœchiométrique plus petite. Dans le cas de la réaction (17.22) ou plus exactement des réactions (17.23), (17.24) le nombre désigné par le symbole [N] est égal à la concentration $[A_2]$ des molécules A_2. Dans le cas le plus simple, on aura

$$Q_{ch} = \Delta H [A_2], \tag{17.28}$$

$$\eta_{ch} = \nu_l \eta_r [A]_0/[A_2]. \tag{17.29}$$

Le rendement chimique de même que le rendement de l'amorçage sont d'autant plus grands que la chaîne laser est longue et que le rendement η_r de la réaction est grand. D'autre part, l'efficacité de l'amorçage, i.e. le nombre relatif de centres actifs $[A]_0/[A_2]$ créés par la source d'amorçage, influe également sur le rendement chimique η_{ch}. Malheureusement il est fort difficile de poursuivre la comparaison de η_{ch} et η_l, car la longueur laser ν_l de la chaîne dépend de façon compliquée de la cinétique de la réaction en chaîne et de la concentration initiale $[A]_0$ des radicaux. Il arrive souvent qu'une augmentation du degré d'amorçage détermine une diminution de la longueur ν_l de la chaîne, un accroissement de η_{ch} et Q_l et une diminution de η_0. Dans les conditions réelles on cherche un compromis entre ces facteurs.

Les lasers aux halogénures d'hydrogène mentionnés au début de cette leçon émettent dans la gamme IR moyenne. Les longueurs d'onde des rayonnements émis sont les suivantes : laser HF — 2,7 μm, laser HCl — 3,7 μm, laser HBr — 4,2 μm, laser DF — 4,3 μm. Il convient de noter que du fait de la structure compliquée des transitions de vibration-rotation de ces molécules apparaissant sous l'action d'une intense excitation vibrationnelle, l'émission peut avoir lieu sur de nombreuses raies dans un large intervalle centré sur les longueurs d'onde indiquées ci-dessus. Toutes ces

longueurs d'onde présentent un intérêt indéniable, mais on doit noter que le quantum d'émission du laser DF coïncide avec l'énergie de la vibration 00^01 de la molécule CO_2. De ce fait la molécule DF chimiquement excitée peut être efficacement utilisée pour l'élaboration de lasers à CO_2 chimiques fondés sur le transfert par résonance de l'énergie d'excitation.

Actuellement on dispose de lasers chimiques fonctionnant aussi bien en régime impulsionnel qu'en régime continu.

Dans les lasers pulsés, une impulsion d'excitation amorce dans un mélange réciproquement stable de gaz une réaction en chaîne qui détermine l'émission. Ce qui importe c'est que la réaction soit rapide, car dans une réaction quasi stationnaire lente les processus de relaxation provoquent la disparition de l'inversion en égalisant tous les degrés de liberté. On décèle ici une certaine analogie avec les lasers à gaz dynamiques où le refroidissement du gaz doit être lui aussi rapide.

Pour l'amorçage par impulsion on utilise différents procédés de photolyse et de radiolyse, plus particulièrement la dissociation par le rayonnement UV et la dissociation par faisceau d'électrons. En qualité de source de rayonnement UV on utilise les décharges à étincelle, l'explosion de fils fins, les décharges glissantes, les lampes de quartz. La durée caractéristique des impulsions de ces sources est d'environ 1 μs. Les faisceaux électroniques peuvent exercer une action plus rapide (1 à 100 ns), mais leur efficacité totale est plus faible.

Pour obtenir une inversion il est préférable d'utiliser les molécules les plus simples pouvant être formées dans les réactions, des molécules diatomiques AB composées d'atomes d'espèces différentes. Dans le cas d'autres molécules, les processus de relaxation $V — V$ deviennent trop compliqués et dans le stade primaire de la réaction exothermique il se produit une redistribution de l'énergie chimique entre les degrés de liberté de la molécule.

L'exemple le plus convenable est le laser à HF. L'émission a surtout lieu dans la bande vibrationnelle de la transition $V = 2 \rightarrow V = 1$ dans la gamme de 2,7 μm. Pour produire du fluor atomique et ensuite du fluorure d'hydrogène, on utilise des mélanges gazeux de molécules fluorées telles que NF_3, UF_6, SF_6 ou WF_6 ou des molécules de fréons et d'hydrogène ou encore de molécules contenant de l'hydrogène. Ainsi avec le mélange $H_2 : F_2 : O_2 : SF_6$ pris dans le rapport 10 : 36 : 14 : 10, dont la pression totale est égale à 1 atm, soumis à l'excitation par un faisceau d'électrons on a obtenu dans des impulsions de rayonnement d'une durée de 30 ns une énergie de 100 J/l. Le rendement de l'excitation atteignait dans ce cas 800 %. Le moment est venu d'attirer l'attention du lecteur sur une particularité importante des lasers chimiques directement liée à leur nature chimique. Le mélange d'hydrogène H_2 et de fluor F_2 absolument purs est instable. En règle générale le mélange explose spontanément, mais en présence de

petites quantités d'oxygène et de SF_6 il devient stable. Le choix de la composition du mélange gazeux initial pour lasers chimiques est un sérieux problème tant du point de vue de la cinétique de la relaxation que de celui de la cinétique des réactions en chaîne explosives.

Le laser $DF - CO_2$ fondé sur le transfert d'énergie $DF^* + CO_2 \rightarrow$ $\rightarrow DF + CO_2^*$ déjà mentionné présente un intérêt considérable notamment pour les applications autonomes. Dans les impulsions de rayonnement d'une longueur d'onde de 10,6 μm et d'une durée de quelques microsecondes, l'énergie émise atteint 150 J/l.

Le fonctionnement des lasers chimiques en régime continu devient possible si l'on procède au mélange des gaz dans des tuyères à volets multiples. Etant donné qu'on peut mélanger en écoulement des réactifs instables les uns par rapport aux autres, si l'on élimine les produits de leur réaction à une vitesse proche de la vitesse du son, il devient possible de concevoir un laser purement chimique n'exigeant aucune source d'excitation. De ce point de vue c'est le laser $DF - CO_2$ qui présente le plus d'intérêt ; les molécules excitées DF^* sont formées lors d'une réaction en chaîne déclenchée en mélangeant le radical stable NO avec du fluor moléculaire ; on obtient ainsi du fluor atomique qui se comporte en centre actif de la réaction en chaîne :

$$NO + F_2 \rightarrow NOF + F, \tag{17.30}$$

$$F + D_2 \rightarrow DF^* + D, \; D + F_2 \rightarrow DF^* + F, \; ... \tag{17.31}$$

En aval du courant gazeux on mélange le CO_2 à DF^* ; le CO_2 est excité selon le schéma connu

$$DF^* + CO_2 \rightarrow CO_2^* + DF. \tag{17.32}$$

La mise au point du système de circulation des gaz présente certaines difficultés eu égard au caractère détonant du mélange gazeux initial et à la toxicité des produits de la réaction. La figure 17.2 représente le schéma d'une cuve à réaction à passage comportant à la sortie une cavité résonnante de laser. En fait ce schéma s'apparente au schéma des lasers à gaz dynamiques et se heurte aux mêmes difficultés de construction de la cavité résonnante qui doit être traversée par l'écoulement de substance active transversalement par rapport à son axe. La puissance réduite de ce laser, rapportée à un taux de consommation de la substance active égal à 1 g/s, s'élève à plusieurs centaines de watts.

En toute rigueur on ne devrait désigner sous le nom de lasers chimiques que les lasers dont le milieu actif est excité chimiquement et dont le rendement d'amorçage dépasse l'unité (il s'agit du rendement extérieur).

Un exemple où prévaut la situation contraire est le laser à photodissociation de l'iode.

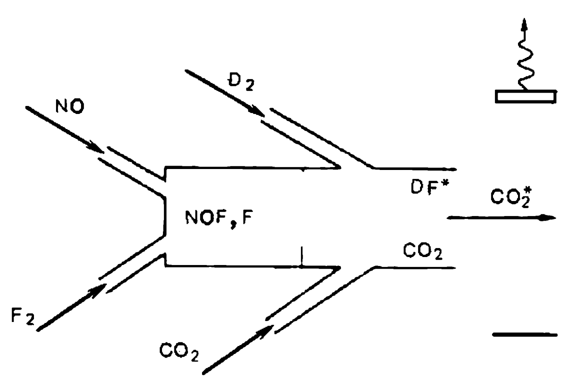


Fig. 17.2. Schéma de principe d'une cuve à réaction du laser chimique DF — CO_2. La flèche ondulée symbolise la sortie de l'émission à travers un miroir semi-transparent.

Il est bien connu en photochimie qu'il existe des cas où les atomes participent plus activement aux réactions d'addition lorsqu'ils sont électroniquement excités. Par conséquent, lors de la dissociation peuvent apparaître des atomes électroniquement excités. Cela signifie qu'une partie au moins de l'énergie de liaison des atomes dans la molécule peut être utilisée pour exciter un fragment de molécule. Si le fragment résultant de la dissociation est un atome, seuls ses niveaux d'énergie électroniques seront excités. Mais comme la molécule initiale est stable, la rupture de ses liaisons exige une dépense d'énergie supérieure évidemment à la partie de l'énergie qui, à la suite de toutes les redistributions, sera libérée sous forme d'énergie électronique de l'atome.

Compte tenu des processus de relaxation, on comprend que la dissociation doit être rapide. L'utilisation ultérieure des produits excités de la dissociation dans une réaction en chaîne est inadmissible, puisque cela entraînerait la disparition de l'excitation. C'est pour cela qu'on utilise la dissociation photochimique pulsée. De ce qui précède on comprend que le rendement de l'excitation est dans ce cas inférieur à l'unité. De ce point de vue les lasers à dissociation photochimique se distinguent nettement des lasers chimiques étudiés dans ce chapitre, mais dans le cadre de la définition plus générale de ces lasers qui a été donnée au début de cette leçon ce sont bien des lasers chimiques.

Le laser à photodissociation le plus connu est le laser à iode émettant sur une longueur d'onde de 1,315 μm ; les atomes d'iode y sont excités par photolyse pulsée des molécules CF_3I. La réaction évolue selon l'équation

$$CF_3I + h\nu \rightarrow I^*(^2P_{1/2}) + CF_3. \qquad (17.33)$$

L'état excité $^2P_{1/2}$ de l'iode est dépeuplé par les transitions radiatives $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ évoluant dans la configuration électronique $5p^5$ de l'atome

d'iode. Le rayonnement d'une source non monochromatique est absorbé dans une large bande d'absorption moléculaire, tandis que les atomes excités émettent une raie fine caractéristique des spectres atomiques.

Comme on peut soumettre à la dissociation photochimique de gros volumes de CF_3I gazeux, le laser à iode de ce type offre d'excellentes potentialités pour l'émission d'impulsions de grande énergie.

On utilise comme source de rayonnement UV pour la dissociation des lampes de quartz, l'explosion de fils fins et les décharges électriques à l'air.

Outre la molécule CF_3I on peut utiliser pour la production d'atomes d'iode excités les molécules C_3F_7I et CH_3I.

Dix-huitième leçon. LASERS À CO ET LASERS À GAZ UTILISANT LES TRANSITIONS ÉLECTRONIQUES DANS LES MOLÉCULES

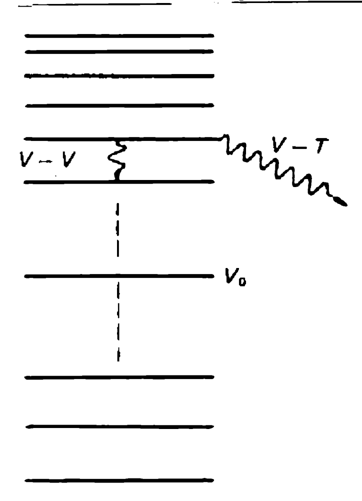
Existence d'un palier des populations des niveaux vibrationnels. Inversion partielle. Particularités du spectre d'émission du laser à CO. Transitions électroniques dans les molécules. Principe de Franck-Condon. Laser à azote. Laser à hydrogène. Lasers à excimères.

Revenons aux lasers moléculaires.

Dans l'infrarouge moyen on remarque le laser à CO émettant dans l'intervalle des longueurs d'onde de 5 à 6,5 μm. A de nombreux points de vue ce laser ressemble au laser à CO_2 : haut rendement, grande puissance de sortie, aptitude à fonctionner en régime pulsé et en régime continu, grande diversité de méthodes de réalisation de l'inversion de population (décharge électrique dans les gaz, méthode dynamique, excitation chimique, excitation par faisceau d'électrons), proximité relative des intervalles des fréquences d'émission et possibilité de sélection de la longueur d'onde d'émission dans une gamme relativement étendue de longueurs d'onde.

Tout comme le laser à CO_2, le laser à CO utilise les transitions de vibration-rotation à l'état électronique fondamental. Les mécanismes d'excitation vibratoire de la molécule CO sont semblables aux mécanismes d'excitation de la molécule CO_2. Il s'agit soit de l'excitation directe des états vibratoires supérieurs de CO par choc électronique, au cours d'une réaction chimique, etc., soit du transfert de l'énergie d'excitation de la molécule N_2 à la molécule CO par l'un des procédés que nous connaissons déjà. Mais on sait bien que l'excitation vibratoire et l'inversion sont des notions différentes. Le mécanisme d'inversion qui agit dans le laser à CO est essentiellement différent de celui qui agit dans le laser à CO_2.

Dans le cas de la molécule CO_2, qui étant polyatomique possède trois modes vibrationnels et dont l'anharmonicité est faible, la théorie de la relaxation des oscillateurs harmoniques s'applique fort bien. L'échange $V — V$ rapide qui se produit dans chacun des modes détermine leurs tempé-



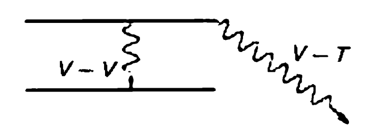


Fig. 18.1. Niveaux vibrationnels de la molécule CO. On a noté l'existence du niveau V_0 au-dessus duquel prédomine la relaxation translationnelle et au-dessous la relaxation vibraïonnelle.

ratures vibrationnelles, dont les valeurs dépendent de l'énergie reçue par la molécule et de la relaxation $V - T$ qui évolue à des taux différents suivant les modes (cf. leçon 15).

Dans le cas de la molécule biatomique CO, qui ne possède qu'un seul mode vibrationnel, cette approche ne convient pas. Dans la molécule CO il se produit une relaxation d'oscillateurs essentiellement anharmoniques. Ce processus est décrit par un système d'équations cinétiques dans lesquelles figurent les populations de tous les niveaux vibrationnels, les constantes de vitesse de toutes les relaxations partielles $V - V$ et $V - T$, les sections d'excitation, les concentrations des donneurs, les énergies d'excitation, les concentrations des impuretés donnant naissance à de nouvelles voies de relaxation et les constantes correspondantes, etc. Même si l'on ne cherche à déterminer que le régime stationnaire en posant que tous les $dN_V/dt = 0$, il subsistera encore un système de près de 60 équations algébriques non linéaires, qui à la différence du cas de CO_2 ne se laisse pas réduire à un système de deux ou de trois niveaux.

Le calcul sur ordinateurs a fourni les résultats suivants.

On trouve dans le système des niveaux vibrationnels de la molécule CO (fig. 18.1) un certain niveau V_0 tel que pour les niveaux $V > V_0$ la relaxation $V - T$ est plus rapide que la relaxation $V - V$ et pour les niveaux $V < V_0$ la relaxation $V - V$ évolue plus vite que la relaxation $V - T$. La valeur

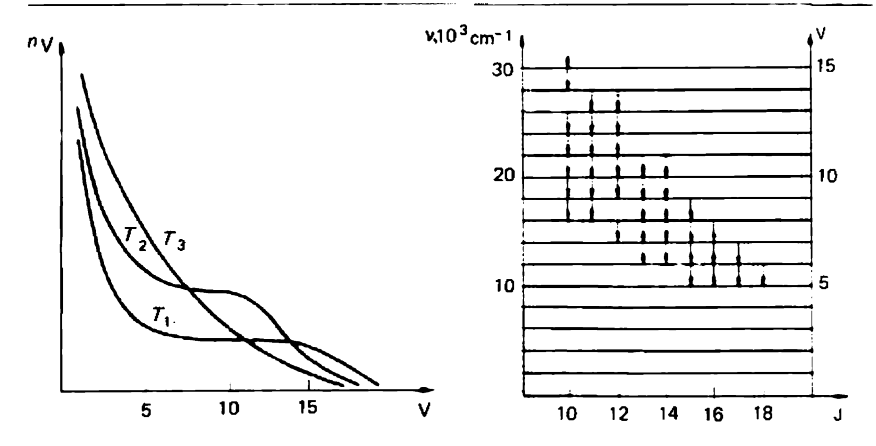


Fig. 18.2. Distribution stationnaire des populations entre les niveaux vibrationnels de l'état électronique fondamental de la molécule CO dans le cas d'une excitation vibratoire ($T_1 < T_2 < T_3$).

Fig. 18.3. Emission en cascade du laser à CO.

de V_0 dépend de la température du gaz et diminue lorsque la température s'élève. En conséquence, à basse température où V_0 a une grande valeur, c'est la relaxation V — V qui prédomine. Dans ces conditions, dans le cas d'une excitation vibrationnelle la distribution des particules en fonction de V est très différente de la distribution de Boltzmann.

Lorsque la température du gaz est comprise entre 150 et 300 K, la distribution vibrationnelle présente un palier. A 200 K et dans le cas d'une excitation par décharge dans un mélange de CO et d'azote, ce palier s'étend de $V = 5$ jusqu'à $V = 10$, mais à plus basse température et dans un mélange gazeux de composition plus adéquate il peut s'étendre jusqu'à $V = 30$ à 35. Lorsqu'on élève la température du gaz de 150 à 500 K, le palier disparaît parce que V_0 s'abaisse, autrement dit parce que le rôle de l'excitation des niveaux vibrationnels supérieurs dans les processus d'échange V — V diminue, tandis que la relaxation V — T gagne en importance et sa vitesse s'accroît. A haute température et en présence d'excitation la distribution vibrationnelle s'identifie rapidement à la distribution de Boltzmann (fig. 18.2).

Ces considérations montrent qu'il est nécessaire de refroidir le mélange gazeux des lasers à CO et qu'il est utile en outre d'y introduire de l'hélium qui est bon conducteur de la chaleur.

L'existence d'un palier dans la distribution des populations sur les niveaux vibrationnels implique que l'inversion vibrationnelle est incomplète. Les considérations développées dans la leçon précédente à propos

des lasers chimiques montrent que le manque d'inversion vibrationnelle peut s'accompagner d'une inversion rotationnelle partielle. Dans ce dernier cas l'émission ne devrait comporter que des raies de la branche P, conclusion corroborée par l'expérience.

On déduit de la formule exacte du facteur d'amplification au centre de la raie correspondant à la transition de vibration-rotation $V \to V-1$, $J-1 \to J$ élargie par effet Doppler le résultat suivant :

$$\alpha_{V,V-1}(J) =$$
$$= \left(\frac{2c}{\pi kT}\right)^{3/2} (2J-1) A_{V,V-1} h \lambda^3 M^{1/2} \left[N_V B_V \exp\left(-\frac{B_V J(J-1)hc}{kT}\right) - \right.$$
$$\left. - N_{V-1} B_{V-1} \exp\left(-\frac{B_{V-1} J(J+1)hc}{kT}\right)\right]. \quad (18.1)$$

Si les populations vibrationnelles sont égales $N_V = N_{V-1}$ et si les constantes rotationnelles sont approximativement égales $B_V \approx B_{V-1}$, le facteur d'amplification doit être positif puisque

$$\exp\left(-\frac{a(J-1)}{kT}\right) - \exp\left(-\frac{a(J+1)}{kT}\right) > 0, \quad (18.2)$$

et d'autant plus grand que la température T du gaz est basse.

La formule (18.1) et la figure 18.2 permettent de conclure que l'émission du laser à CO résulte de transitions en cascade. La figure 18.3 illustre la façon dont les transitions en cascade conduisent à l'occupation progressive des états vibratoires. L'émission résultant de transitions V — R correspondantes se produit de façon successive, i.e. avec un décalage dans le temps. La figure 18.3 montre aussi comment et pourquoi le laser à CO fonctionne sur plusieurs fréquences. D'autre part, on comprend que l'émission du laser à CO étant due à des transitions radiatives en cascade (à la différence des lasers à CO_2 où l'existence d'un niveau de départ commun rend possible la compétition des raies d'émission), il soit impossible de transformer toute l'énergie emmagasinée par les particules dans leur distribution hors d'équilibre sur les niveaux vibrationnels en un rayonnement monofréquence. En régime continu le laser à CO émet sur plusieurs fréquences et en régime impulsionnel il se produit une commutation des fréquences d'émission. A pression gazeuse élevée, avec un pompage intense (décharge semi-autonome entretenue par un faisceau d'électrons) et en régime impulsionnel l'émission a lieu sur plusieurs fréquences simultanément.

Les cavités à transmission sélective ainsi que les éléments à dispersion réglable permettent de sélectionner l'une des fréquences d'émission.

Ce sont les systèmes simples à décharge longitudinale d'une construction analogue à celle des lasers à CO_2 qui sont les plus répandus. En utili

sant des mélanges de CO avec l'hélium, l'azote et de petites quantités d'oxygène refroidis jusqu'à 150—200 K, la puissance émise par le laser à CO en régime continu sur toutes les fréquences atteint plusieurs dizaines de watts. Des réactions chimiques compliquées évoluent dans la décharge et modifient la composition du mélange et la nature des partenaires de relaxation. En utilisant des mélanges gazeux contenant du xénon, on a réussi à faire fonctionner à température ordinaire des lasers à CO à cuve scellée.

Dans les lasers à CO du type TEA ainsi que dans les lasers à CO à décharge semi-autonome on utilise des mélanges tels que CO : Xe : He = = 1 : 1 : 8.

L'intérêt qu'on porte au laser à CO tient non seulement à l'importance de la gamme des longueurs d'onde dans laquelle il émet, mais aussi à ses excellentes caractéristiques énergétiques. La structure des niveaux d'énergie du milieu actif du laser à CO (cf. fig. 18.3) est telle que le rendement énergétique de toutes les raies d'émission comprises entre $V \geqslant 25$ et $V = 5$ peut être supérieur à 50—75 %.

Remarquons pour conclure que les raies d'émission du laser à CO sont désignées par le symbole $P_{V,\,V-1}(J)$, où P désigne la branche P, J le numéro du sous-niveau rotationnel du niveau vibrationnel inférieur de la transition $V \to V - 1$. Les spectres de la molécule CO étant bien connus, cette notation symbolique est parfaitement explicite.

Jusqu'ici il n'a été question que de lasers à gaz moléculaires ayant en vue les spectres vibrationnels des molécules. Mais on peut obtenir une émission laser sur la base de transitions électroniques dans les molécules.

L'énergie électronique des molécules dépend de façon compliquée de leur configuration. Le système de niveaux électroniques est complexe et offre de nombreuses potentialités. L'énergie est distribuée entre de nombreux degrés de liberté. La symétrie axiale des molécules biatomiques et polyatomiques linéaires permet de classifier les états électroniques de ces molécules d'après les valeurs du nombre quantique Λ caractérisant la valeur absolue de la projection du moment orbital total L sur l'axe de la molécule. Par analogie avec les états atomiques S, P, D, F, G, ... les états moléculaires avec $\Lambda = 0, 1, 2, 3, 4$, ... sont désignés respectivement par Σ, Π, Δ, Φ, Γ, ... La multiplicité du niveau $\mu = 2s + 1$ est indiquée en haut et à gauche du symbole ; par exemple l'état avec $\Lambda = 1$ et $s = 1/2$ est noté $^2\Pi$, l'état avec $\Lambda = 0$ et $s = 1$ par $^3\Sigma$, etc.

L'état fondamental des molécules chimiquement stables est le plus souvent l'état $^1\Sigma$.

Les transitions dipolaires vérifient la règle de sélection $\Delta\Lambda = 0, \pm 1$, ce qui signifie que dans l'approximation dipolaire sont permises les transitions $\Sigma \to \Sigma$, $\Pi \to \Sigma$, etc.

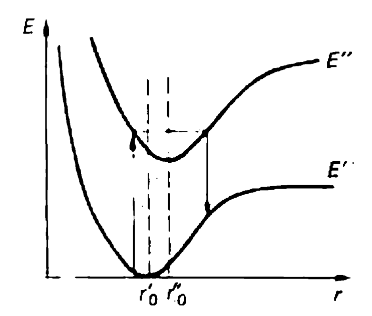


Fig. 18.4. Illustration du principe de Franck-Condon.

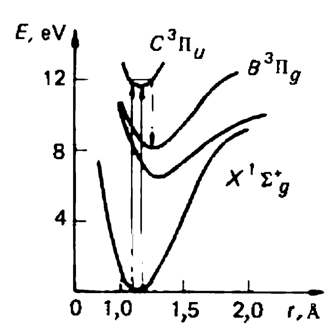


Fig. 18.5. Représentation des niveaux d'énergie de l'azote moléculaire.

La distribution des intensités dans le système des bandes des transitions électroniques de la molécule dépend des propriétés des courbes de l'énergie pontentielle dans les états électroniques fondamental et excité $E'(r)$ et $E''(r)$, conformément au principe de Franck-Condon : lorsque la molécule passe d'un état électronique à un autre, il ne se produit aucune variation notable ni de la vitesse de déplacement ni de la position relative des noyaux atomiques dans la molécule. Autrement dit, le principe de Franck-Condon autorise les transitions entre états électroniques uniquement suivant la verticale du diagramme des énergies potentielles reliant les points dits de retour du mouvement vibratoire de la molécule entre les parois d'un puits de potentiel (fig. 18.4).

En règle générale l'état électronique excité correspond à une molécule plus diffuse. Dans les cas d'une molécule diatomique l'abscisse du minimum du terme électronique correspond évidemment à la distance d'équilibre r_0 des noyaux atomiques. Par conséquent, on doit avoir généralement $r_0'' > r_0'$ (fig. 18.4). Cette circonstance s'avère déterminante pour le fonctionnement du laser à azote émettant dans l'ultraviolet ($\lambda = 337{,}1$ nm).

La figure 18.5 représente la disposition des niveaux énergétiques. La disposition relative des courbes potentielles des niveaux correspondants aux états supérieur ($C^3\Pi_u$), inférieur ($B^3\Pi_g$) et fondamental ($X^1\Sigma_g^+$) est telle que dans le cas d'une excitation électronique il se produit, conformément au principe de Franck-Condon, une occupation efficace des niveaux $V = 0$ et $V = 1$ de l'état C. L'état B reste inoccupé. On peut dire *grosso modo* que grâce aux chocs électroniques, l'état des molécules N_2 se déplace de bas en haut sur le diagramme « énergie potentielle — distance internucléaire» sans affecter les termes décalés vers la droite et donc sans provoquer l'occupation des niveaux lasers inférieurs. Simultanément le principe de Franck-Condon autorise les transitions radiatives de l'état C à l'état B

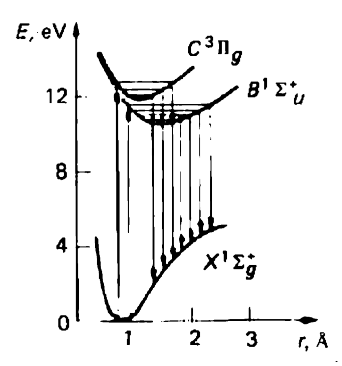


Fig. 18.6. Représentation des niveaux d'énergie de l'hydrogène moléculaire.

mais uniquement suivant la verticale descendante des points de retour de droite du terme $C^3\Pi_u$.

C'est de cette façon que le principe de Franck-Condon appliqué au laser à N_2 permet de séparer les voies d'excitation et d'émission. Ce type de séparation se manifeste encore plus nettement dans le cas du laser à H_2 (gamme de 116 à 126 nm, UV lointain) dont la disposition des niveaux est représentée sur la figure 18.6.

En raison de la petite durée de vie des états supérieurs on réalise l'excitation des lasers à hydrogène et à azote à l'aide de dispositifs de décharge par impulsion ayant une petite inductance. Notons que ce sont des lasers à transitions auto-limitées, puisque la durée de vie de leurs niveaux inférieurs est supérieure à celle de leurs niveaux supérieurs.

La durée de vie radiative de l'état supérieur du laser à azote (38 ns) est près de 50 fois plus grande que celle du laser à hydrogène (0,8 ns). De ce fait la réalisation du système d'excitation du laser à azote est plus simple, quoique dans ce cas aussi on doive utiliser la décharge transversale. En outre la courte durée de vie de l'état supérieur, la raideur du front de déclenchement de l'inversion et le caractère auto-limité de l'émission déterminent tous ensemble un très court temps d'excitation de l'amplification (voir leçon 14) qui représente pour le laser à azote 3 à 10 ns. La durée de l'impulsion de pompage ne doit pas être supérieure à cette valeur. Or en l'espace de 3 ns la lumière ne parcourt que près d'un mètre. Il en résulte que pour une impulsion qui a été formée à l'une des extrémités d'un laser assez long et qui arrive à son autre extrémité, l'amplification s'évanouit si la décharge transversale de pompage a été déclenchée simultanément sur toute la longueur du laser. On en conclut qu'il faut disposer d'une onde d'excitation progressive se propageant le long de l'axe du tube du laser en synchronisme avec l'impulsion lumineuse générée. Dans ce cas on obtient un facteur élevé

d'amplification unidirectionnelle et l'impulsion d'émission spontanée s'amplifie au cours de sa propagation et acquiert de ce fait un caractère directionnel et « monochromatique ».

Les lasers à azote, à hydrogène et les autres lasers à courtes longueurs d'onde (UV, UV lointain) caractérisés par une durée d'inversion très brève ($\leqslant 1$ ns) sont appelés lasers superfluorescents ou lasers à superluminosité. Cela signifie que dans ces lasers la réaction n'arrive pas à se manifester au cours du temps d'existence de l'inversion, de sorte qu'ils ne constituent pas des systèmes auto-oscillants à réaction positive et émettent un rayonnement de bruits amplifié, mais en raison du caractère cohérent de l'amplification des ondes progressives dans les actes d'émission stimulée, ce rayonnement devient pratiquement monochromatique et unidirectionnel (voir leçon 5).

Dans les lasers à N_2 et à H_2 la pression du gaz est généralement comprise entre 10 et 100 torrs. A plus grande pression on observe une extinction collisionnelle des états moléculaires excités.

Pour une densité de puissance de pompage inférieure à 5 kW/cm^3, le laser à azote présente une puissance de pointe d'émission égale à 1 MW dans une impulsion d'une durée de 10 ns, dans le cas du laser à hydrogène, la puissance de pointe atteint 10 kW dans une impulsion de 1 ns. Le rendement de ces lasers est faible ; il est compris entre 0,01 et 1 % suivant les conditions d'excitation. Les générateurs d'impulsion servant à l'alimentation de ces lasers qui débitent des impulsions caractérisées par des courants se chiffrant par kiloampères sous des tensions se chiffrant en kilovolts et ayant une durée de quelques nanosecondes sont réalisés sur la base de générateurs de Marx, des lignes de Blumlein et d'autres dispositifs de l'électronique des courants forts et exigent une mise au point méticuleuse. Remarquons que la pénétration de l'électronique quantique dans la gamme de l'ultraviolet ouvre de nouvelles possibilités d'application des lasers en photochimie et en photobiologie.

On notera que le laser à azote fonctionne à une fréquence de répétition de 100 Hz. La circulation transversale du gaz assurant un refroidissement efficace du milieu actif du laser permettrait d'augmenter la fréquence de répétition d'impulsions jusqu'à 10^5 Hz, i.e. jusqu'à la valeur inverse de la durée de vie du niveau laser inférieur $B^3\Pi_g$. Avec une fréquence de répétition d'impulsions de 1 kHz, le laser pulsé se comporte du point de vue des utilisateurs comme un laser à fonctionnement continu. Les lasers à azote fonctionnant en régime d'impulsions périodiques sont utilisés pour le pompage des lasers à colorant. L'élaboration de lasers à hydrogène fonctionnant dans le régime d'impulsions périodiques se heurte au manque de générateurs d'alimentation relativement simples.

Examinons la question de l'appropriation de la gamme de l'ultraviolet

par les techniques lasers. Les difficultés en sont évidentes et sont non seulement purement techniques mais présentent aussi un caractère de principe. C'est la diminution de la longueur d'onde qui en est la cause. On sait (cf. formules (3.13) et (4.25)) que le facteur d'amplification est proportionnel à l'inversion Δn, au carré de l'élément de matrice $\langle\mu\rangle^2$ et au rapport de la fréquence ν de la transition à la largeur $\Delta\nu$ de celle-ci :

$$\alpha \backsim \langle\mu\rangle^2 \Delta n \nu / \Delta\nu. \tag{18.3}$$

L'inversion dépend, elle, du taux de pompage Λ, du nombre total N de particules et de la durée de vie τ :

$$\Delta n = N\Lambda\tau. \tag{18.4}$$

Ainsi

$$\alpha \backsim \Lambda\langle\mu\rangle^2 N\tau\nu/\Delta\nu. \tag{18.5}$$

C'est la variation du produit $\tau\nu/\Delta\nu$ avec la fréquence qui détermine essentiellement la dépendance $\alpha(\nu)$.

Considérons quelques cas particuliers.

Posons que l'élargissement collisionnel détermine simultanément la durée de vie et la largeur de la raie. On a alors $N \backsim p$, $\Delta\nu \backsim p$, $\tau \backsim 1/p$ et $\alpha \backsim \nu/p$, où p est la pression du gaz. Dans le cas où l'élargissement collisionnel détermine la durée de vie, la largeur de la raie étant déterminée par l'effet Doppler, on aura $N \backsim p$, $\Delta\nu \backsim \nu$, $\tau \backsim 1/p$ et le facteur d'amplification est indépendant de la fréquence. Mais à mesure que la fréquence croît, l'importance de l'émission spontanée ne fait qu'augmenter, puisque sa probabilité est proportionnelle au cube de la fréquence. Ainsi, tôt ou tard, suivant la valeur de l'élément de matrice de la transition, celles de la pression et de la température du gaz ainsi que d'autres facteurs, c'est l'émission spontanée qui commence à prédominer.

Les cas particuliers envisagés ci-dessus se rapportent à la gamme de l'infrarouge ainsi qu'à la partie adjacente de la région visible du spectre. Dans la partie du spectre correspondant à des longueurs d'onde plus courtes, la durée de vie est limitée par le dépeuplement spontané. Si la largeur de la raie est déterminée par l'effet Doppler et si la durée de vie est la durée de vie naturelle, on a $N \backsim p$, $\Delta\nu \backsim \nu$, $\tau \backsim 1/\nu^3$ et $\alpha \backsim p/\nu^3$. Dans le cas où la largeur de la raie et la durée de vie sont déterminées par l'émission spontanée on a $N \backsim p$, $\Delta\nu \backsim \nu^3$, $\tau \backsim 1/\nu^3$ et $\alpha \backsim p/\nu^5$. Ces considérations peuvent être résumées sous la forme suivante :

$$\alpha \backsim \Lambda\langle\mu\rangle^2 \begin{cases} \nu/p & \text{élargissement collisionnel,} \\ p/\nu^3 & \text{élargissement Doppler et durée de vie naturelle,} \\ p/\nu^5 & \text{élargissement naturel.} \end{cases} \tag{18.6}$$

Ces résultats montrent que la forte diminution de l'amplification accompagnant l'élévation de la fréquence peut être partiellement compen-

sée par un accroissement de l'intensité de pompage Λ et de la pression p du gaz, ainsi que par le choix d'une transition caractérisée par une grande valeur de $\langle \mu \rangle^2$. Ce dernier facteur exclut pratiquement la possibilité d'utiliser un gaz atomique, puisque les transitions UV sont généralement interdites pour les atomes. Il faut donc utiliser les molécules.

Dans ce qui précède on a analysé le fonctionnement des lasers à azote et à hydrogène moléculaires, ce qui a permis de mettre en évidence la nécessité d'un pompage d'autant plus intense que la longueur d'onde est petite (337,1 nm pour le laser à azote et 116 nm pour le laser à hydrogène). Malheureusement les transitions entre états électroniques des molécules stables pouvant donner lieu à l'émission présentent la particularité que la durée de vie du niveau laser supérieur est plus courte que celle du niveau inférieur. Ce fait limite grandement les potentialités des lasers correspondants.

Une nouvelle approche fut trouvée lorsqu'on remplaça les molécules stables par des molécules n'existant pas à l'état fondamental. On peut citer à titre d'exemple les gaz rares qui ne forment pas de molécules diatomiques A_2 à l'état fondamental en raison de l'occupation symétrique des orbites électroniques des atomes A. L'interaction des atomes A lors des collisions en phase gazeuse présente un caractère répulsif. Néanmoins lors de leur collision, deux atomes A se trouvant côte à côte forment le dimère A_2. A mesure que la pression augmente, le nombre relatif d'atomes se trouvant dans cet état de dimères temporels, ne possédant pas de paramètres constants, augmente.

On sait qu'en phase gazeuse le temps s'écoulant entre deux chocs successifs est donné par l'expression

$$\tau = 1/n\sigma u, \tag{18.7}$$

où n est la densité des particules gazeuses, σ la section de collision, u la vitesse thermique moyenne. Le temps efficace de libre parcours $\Delta\tau$ peut être estimé à l'aide de la relation

$$\Delta\tau = \sqrt{\sigma}/u. \tag{18.8}$$

En posant $\sigma = 10^{-16}\,\text{cm}^2$ et $u = 10^5\,\text{cm/s}$, $\Delta\tau$ est égal à $10^{-13}\,\text{s}$, ce qui correspond à quelques périodes de vibrations IR. Le nombre relatif d'atomes se trouvant à l'état de dimères peut être estimé à l'aide de la relation

$$\Delta\tau/\tau = n\sigma\sqrt{\sigma}. \tag{18.9}$$

On voit que ce nombre relatif croît avec la pression, mais dès la pression atmosphérique il représente 10^{-5} à 10^{-4}. Dans le cas où l'un au moins des atomes entrant en collision se trouve dans un état électronique excité, la symétrie de son enveloppe électronique est perturbée et la cohésion affaiblie. Dans ces conditions, lors du choc, un des électrons peut aller se placer

sur une orbite commune aux deux atomes, ce qui correspond à l'établissement d'une liaison chimique et donc à la stabilisation du dimère. Comme la durée de vie de l'état électronique excité est notablement supérieure au temps de libre parcours $\Delta\tau$, le nombre relatif de dimères excités est plus grand que celui que donne la formule (18.9). Lorsque l'excitation électronique s'évanouit, le dimère se désagrège et les atomes retournent à l'état fondamental.

L'émission correspondant aux transitions entre un niveau supérieur stable et un niveau moléculaire inférieur répulsif a été obtenue à partir de dimères et d'halogénures de gaz rares (Xe_2, Kr_2, Ar_2, XeCl, XeF, KrCl, KrF, ArCl, ArF), à pression gazeuse élevée dans les conditions d'une excitation du milieu actif par un faisceau d'électrons rapides ou par une décharge intense dans le gaz. Les lasers de ce type sont appelés lasers à excimères, puisque leur milieu actif est formé par des molécules dimères qui ne sont stables qu'à l'état électronique excité et qu'on appelle excimères (« *exc*ited di*mer* »).

Les lasers à excimères constituent une nouvelle catégorie de lasers émettant dans l'ultraviolet. Leur découverte fut pour l'électronique quantique un événement aussi important que la découverte des lasers à CO_2 ou à colorant.

Nous expliquerons le principe de fonctionnement des lasers à excimères en prenant pour exemple le laser à xénon (λ = 172,5 nm). L'état fondamental de la molécule Xe_2 est instable (fig. 18.7). Le gaz non excité se compose surtout d'atomes. L'occupation de l'état laser supérieur, i.e. la formation d'une molécule excitée stable Xe_2^*, résulte d'une succession compliquée de processus collisionnels dans un gaz soumis à l'action d'un faisceau d'électrons rapides. Parmi ces processus collisionnels un rôle important revient à l'ionisation et à l'excitation des atomes de xénon par les électrons. La formation de molécules excitées résulte de la collision triple des atomes de xénon excités et non excités :

$$Xe^* + 2Xe \rightarrow Xe_2^* + Xe. \qquad (18.10)$$

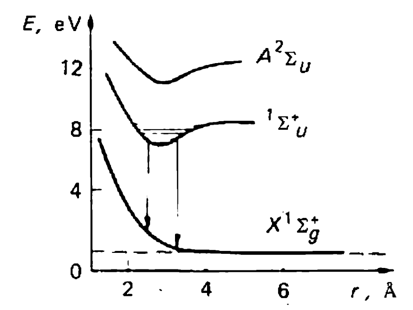


Fig. 18.7. Courbes de l'énergie potentielle de l'excimère Xe_2^*. Le terme $^3\Sigma_u^+$ adjacent au terme $^1\Sigma_u^+$ n'est pas représenté sur cette figure.

Dans le bilan général un rôle important revient à la conversion des ions atomiques de xénon en ions moléculaires :

$$Xe^+ + 2Xe \rightarrow Xe_2^+ + Xe, \tag{18.11}$$

suivie d'une recombinaison dissociative :

$$Xe_2^+ + e \rightarrow 2Xe^* + e, \tag{18.12}$$

qui produit des atomes excités qui seront ensuite utilisés pour former des molécules excitées.

Le fait que la molécule excimère ne se forme que dans une collision de trois particules impose l'utilisation de hautes pressions gazeuses. Le laser à xénon fonctionne à des pressions supérieures à 10 atm.

La molécule excitée (fig. 18.7) perd son énergie d'excitation dans les processus radiatifs suivants:

$$Xe_2^*(^1\Sigma_u^+) \rightarrow 2Xe + \hbar\omega \tag{18.13}$$

et

$$Xe_2^*(^3\Sigma_u^+) \rightarrow 2Xe + \hbar\omega \tag{18.14}$$

avec des temps de désagrégation de 5 et 40 ns respectivement. Dès que la molécule se retrouve, à la suite de ces transitions de génération, à l'état fondamental, elle se décompose. Cela provoque l'évacuation spontanée du niveau laser inférieur. Un trait distinctif des lasers à excimères est la non-occupation du niveau inférieur.

En raison du caractère répulsif du terme inférieur, celui-ci ne comporte pas d'états qui soient nettement rotatoires et vibratoires ; en conséquence, la transition assurant l'émission est à large bande, ce qui permet de produire des émissions lasers à fréquence accordable. Pour le laser à xénon, la largeur de la raie d'amplification est de 5 nm environ, la longueur d'onde centrale étant égale à 172,5 nm.

La nécessité de pressions gazeuses élevées, la grande largeur de la raie d'amplification, la brève durée de vie des états supérieurs, tout cela impose un pompage de grande intensité, permettant d'injecter une énergie de 0,2 J/cm^3 en 0,1 à 1 ns. Le laser à xénon présente un coefficient élevé de conversion de l'énergie du faisceau électronique en energie de rayonnement laser (jusqu'à 20 %). La puissance d'émission atteint des centaines de mégawatts.

Nous voyons que la possibilité d'élaboration des lasers à excimères se fonde sur l'allure singulière des courbes de l'énergie potentielle des états fondamental et excité de la quasi-molécule formée lors du rapprochement des atomes. Dans le cas de dimères formés de deux atomes d'un gaz rare, la profondeur du puits de potentiel de l'état fondamental étant notablement inférieure à kT à la température ordinaire, ces dimères ne se forment pas dans les conditions ordinaires.

Sont particulièrement intéressants les dimères formés d'un atome d'halogène et d'un atome de gaz rare (monohalogénures de gaz rares). La raison en est que leur utilisation permet de faire fonctionner les lasers en excitant le gaz non seulement par bombardement électronique comme dans le cas des dimères de gaz rares, mais aussi à l'aide d'une décharge électrique.

On ne dispose d'aucune donnée sûre concernant la structure du terme répulsif des halogénures des gaz rares. Comme on n'a jamais observé ce type de dimères à la température ordinaire, on en a conclu que les puits de potentiel correspondants, s'ils existent, doivent être peu profonds. Le mécanisme de formation des termes supérieurs des transitions lasers dans les excimères est loin d'être élucidé. Les considérations qualitatives témoignent que ces excimères se forment plus facilement que les dimères des gaz rares.

Il existe en effet une profonde analogie entre les molécules excitées formées d'atomes d'un gaz rare et d'un halogène et les molécules formées d'atomes d'un métal alcalin et d'un halogène. Un atome de gaz rare électroniquement excité ressemble à l'atome de métal alcalin qui suit le gaz rare dans le tableau périodique. Cet atome s'ionise aisément, puisque l'énergie de liaison de l'électron excité est fortement amoindrie. En raison de la forte affinité de l'électron d'halogène, cet électron excité peut être détaché facilement, par exemple lors du choc des atomes correspondants il passe sur la nouvelle orbite englobant les deux atomes et réalise ainsi une réaction dite d'harponnage.

Le processus d'harponnage s'avère tellement efficace qu'il a lieu lors de chocs binaires (au lieu de faire intervenir trois atomes comme dans le processus (18.10)) auxquels participent la molécule et non pas l'atome d'halogène :

$$R^* + X_2 \rightarrow RX^* + X, \tag{18.15}$$

où R est l'atome de gaz rare, X l'halogène. La constante de vitesse de ce processus est $K \approx 10^{-10}$ à 10^{-11} cm^3/s, donc assez grande. Dans l'ensemble de processus conduisant à la formation de molécules excimères RX^* un rôle essentiel revient à la réaction

$$R^+ + X_2 + e \rightarrow RX^* + X. \tag{18.16}$$

Comme les halogènes, le fluor notamment, sont chimiquement très actifs, la question du composé halogéné devrait être fort importante. Heureusement les réactions de la forme (18.15) évoluent aussi rapidement avec les molécules d'halogènes X_2 qu'avec différentes autres molécules telles que NF_3, SF_6, BF_3, les fréons, etc.

Grâce au caractère binaire des processus (18.15) et (18.16) les lasers aux molécules excimères RX^* fonctionnent à des pressions notablement plus faibles que dans le cas de lasers à molécules R_2^*. Le mélange gazeux de

ces lasers doit contenir un gaz tampon tel l'argon ou l'hélium ayant une pression partielle élevée. Lorsqu'on utilise l'excitation par un faisceau d'électrons, le gaz tampon a pour fonction d'augmenter le nombre d'électrons du faisceau et de transformer leur grande énergie en énergie d'excitation des molécules ; dans le cas de l'excitation par décharge électrique, le gaz tampon accélère l'ionisation volumique et l'obtention d'une densité électronique $n_e = 10^{14}$ à $10^{15}\,\mathrm{cm}^{-3}$.

Il existe une grande différence entre les pressions régnant dans les lasers à R_2^* et à RX^*. Les pressions régnant dans les lasers à Xe_2, Kr_2, Ar_2 sont de 10^4 torrs et les gaz ne contiennent pas d'additions. Les mélanges gazeux pour lasers à RX^* contiennent de l'argon ou de l'hélium à une pression partielle de plusieurs centaines de torrs, i.e. 1,5 atm, le gaz R à une pression partielle de plusieurs dizaines de torrs et un halogène ou un composé halogéné à une pression partielle de quelques torrs.

Indiquons pour information les longueurs d'onde des rayonnements émis par quelques lasers à excimères :

Ar_2 — 126,5 nm, Kr_2 — 145,4 nm, Xe_2 — 172,5 nm,
ArF — 192 nm, KrCl — 222,0 nm, KrF — 249,0 nm,
XeCl — 308,0 nm, XeF — 352,0 nm.

On notera la grande importance prise par les lasers à KrF, XeCl et XeF.

Signalons aussi que la production d'une décharge homogène de quelques nanosecondes dans un gaz à la pression atmosphérique, créant une densité électronique de 10^{14} à $10^{15}\,\mathrm{cm}^{-3}$, est un problème technique fort ardu. L'élaboration des lasers à excimères utilisant les monohalogénures des gaz rares utilise largement les acquis des recherches sur les lasers à CO_2, à CO, à N_2 et à H_2 de haute pression. Dans nombre de cas on a pu mettre en œuvre des solutions ayant fait leurs preuves en remplaçant un gaz par un autre.

Dix-neuvième leçon. POMPAGE PAR ÉMISSION AUXILIAIRE DES SYSTÈMES À PLUSIEURS NIVEAUX D'ÉNERGIE

Lasers à milieux actifs condensés possédant un grand nombre de niveaux d'énergie. Méthode de pompage par émission auxiliaire. Systèmes à trois et à quatre niveaux d'énergie. Relaxation non radiative dans les corps solides. Matrice du laser à solide. Le rubis. Configurations électroniques des atomes et des ions des éléments de transition. Etats fondamentaux des ions chrome et néodyme trivalents.

Lorsqu'on passe des milieux actifs gazeux aux milieux condensés et en particulier aux milieux solides, on constate tout d'abord un fort accroissement (de 10^3 fois) du degré d'inversion de population. Il s'ensuit que la création d'un milieu actif en phase condensée permettrait d'obtenir un plus

grand degré d'inversion et partant une plus grande énergie d'émission. Or on ne peut utiliser dans ce cas les méthodes de création du milieu actif élaborées pour les milieux gazeux (voir leçon 13) fondées sur les phénomènes de transport des charges ou des particules dans le milieu ou sur des écoulements hors d'équilibre des gaz.

Dans le cas de solides diélectriques, le seul procédé d'action ne provoquant pas leur destruction, mais susceptible d'y rompre l'état d'équilibre thermodynamique, surtout s'il s'agit d'un solide de gros volume, est le pompage optique. Dans le cas de solides conducteurs on peut y faire passer un courant électrique, mais ce procédé sera décrit lors de l'étude des lasers à semiconducteurs. Comme les solides présentent de larges bandes d'absorption, leur éclairage à l'aide de puissantes sources de lumière non monochromatique leur permet d'absorber d'importantes quantités d'énergie. Par conséquent si un diélectrique transparent contient des centres d'impureté déterminant un système adéquat de niveaux d'énergie, on ne pourra y créer une inversion de population que par absorption de l'énergie lumineuse. L'existence d'au moins trois niveaux d'énergie est dans ce cas nécessaire par principe et ce pour les raisons suivantes.

Nous savons qu'une émission de résonance d'intensité suffisante peut modifier grandement, jusqu'à saturation même, la distribution des populations entre les niveaux liés entre eux par l'émission. La population du niveau supérieur s'accroît et celle du niveau inférieur diminue. Si dans l'échelle des énergies on trouve entre ces deux niveaux un troisième niveau non résonnant, on peut s'attendre à une inversion de population pour une transition dans laquelle ce troisième niveau se comporte comme niveau de départ ou de retombée. La figure 19.1 illustre sous une forme simplifiée l'idée de la méthode de pompage par émission auxiliaire qui a été suggérée en 1955 par Bassov et Prokhorov pour la création de milieux actifs dans les systèmes à plusieurs niveaux d'énergie.

Analysons le système des niveaux d'énergie représenté sur la figure 19.2. Posons que les multiplicités de dégénérescence des niveaux 1, 2 et 3 sont

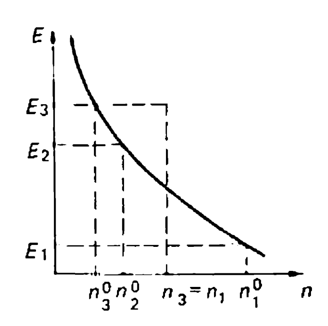


Fig. 19.1. Schéma illustrant le principe du rayonnement de pompage auxiliaire appliqué à un système à plusieurs niveaux. Les populations des niveaux E_3 et E_1 s'égalisent lorsque la transition 1 → 3 est saturée par le rayonnement de pompage ; l'inversion de population apparaît sur la transition 3 → 2.

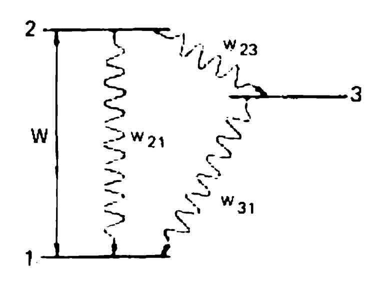


Fig. 19.2. Schéma illustrant les conditions de réalisation de l'inversion de population dans un système à trois niveaux de la gamme optique. L'indexation des niveaux est traditionnelle.

égales : $g_1 = g_2 = g_3$. Posons d'autre part que tous les $h\nu_{ik} \gg kT$ (gamme optique). Les niveaux 1 et 2 sont liés par l'émission qui induit les transitions avec une probabilité $W_{12} = W_{21} = W$. Le dépeuplement du niveau 2 s'effectue suivant deux voies (2 → 1 et 2 → 3) caractérisées respectivement par les probabilités w_{21} et w_{23}. Le niveau 3 se dépeuple avec une probabilité w_{31}. Compte tenu de la condition $h\nu_{ik} \gg kT$, on peut négliger l'occupation thermique des niveaux 2 et 3, en posant que les probabilités de relaxation w_{12}, w_{13}, w_{32} sont nulles. Dans ces conditions les équations d'évolution des populations des niveaux 1, 2 et 3 s'écrivent respectivement comme suit :

$$dn_1/dt = (n_2 - n_1)W + n_2 w_{21} + n_3 w_{31},$$

$$dn_3/dt = n_2 w_{23} - n_3 w_{31}, \qquad (19.1)$$

$$n_1 + n_2 + n_3 = N,$$

où N est la densité des particules possédant les niveaux d'énergie représentés sur la figure 19.2. En régime stationnaire lorsque tous les $dn_i/dt = 0$, on trouve pour la différence $n_3 - n_1$ des populations l'expression

$$n_3 - n_1 = N\frac{W(w_{23} - w_{31}) - w_{31}(w_{23} + w_{21})}{W(w_{23} + 2w_{31}) + w_{31}(w_{23} + w_{21})}. \qquad (19.2)$$

La condition d'inversion pour la transition 3 → 1 correspond à la valeur positive du numérateur de (19.2), ce qui implique que

$$W > \frac{w_{31}(w_{23} + w_{21})}{w_{23} - w_{31}}. \qquad (19.3)$$

L'inégalité (19.3) ne peut être vérifiée que si

$$w_{23} > w_{31}. \qquad (19.4)$$

Cette dernière inégalité signifie que lors des transitions non radiatives l'occupation du niveau supérieur doit être plus rapide que son dépeuplement. Signalons par avance que le schéma énergétique représenté sur la figure 19.2 et le système d'équations d'évolution (19.1) correspondent au laser à rubis. Pour le rubis le niveau 3 est métastable et les probabilités

des transitions non radiatives w_{23}, w_{31}, w_{21} vérifient l'inégalité

$$w_{23} \gg w_{31},\ w_{21}. \tag{19.5}$$

La condition d'inversion s'écrit alors

$$W > w_{31}. \tag{19.6}$$

Cette condition explicite le fait suivant : si les particules retombent du niveau supérieur, qu'on peuple spécialement par pompage, sur le niveau métastable plus vite qu'elles ne le quittent ($w_{23} > w_{31}$), l'inversion s'établit et se maintient si le peuplement du niveau supérieur par pompage s'effectue plus rapidement que le dépeuplement du niveau métastable. Dans ces conditions la différence des populations est donnée par

$$n_3 - n_1 = N \frac{W - w_{31}}{W + w_{31}}; \tag{19.7}$$

lorsque $W \to \infty$, cette différence tend vers N, ce qui, généralement, n'arrive jamais.

Comme dans le système à trois niveaux l'inversion est établie par rapport à l'état fondamental, elle n'apparaît pas aussitôt qu'on déclenche le pompage, puisque sous l'action du pompage les particules doivent s'accumuler sur le niveau métastable pendant un temps fini τ. Pour savoir à quel moment la différence $n_3 - n_1$ deviendra positive, il faut analyser les processus transitoires, ce qui revient à résoudre le système d'équations différentielles (19.1). Sans nous attarder sur la solution générale, examinons le cas particulier du laser à rubis. Dans ce cas la probabilité de la transition non radiative w_{23} est la plus grande des vitesses de tous les processus contrôlant la distribution des particules entre les niveaux énergétiques 1, 2 et 3. Pour le rubis non seulement la condition (19.5) est vérifiée, mais encore, pour des intensités de pompage raisonnables, on a

$$w_{23} > W. \tag{19.8}$$

Cela signifie que les particules ne s'accumulent pas sur le niveau résonnant 2, autrement dit qu'il n'y en a pas, car elles passent aussitôt sur le niveau métastable 3. Lors du cycle de pompage illustré par la figure 19.2, le niveau 2 joue un rôle d'intermédiaire transmettant l'énergie d'excitation au niveau laser supérieur 3, un peu comme le font les atomes d'azote dans le laser à CO_2. En posant alors $n_2 = 0$, ce qui revient à poser $n_3 = N - n_1$, on réduit le système (19.1) à une seule équation de premier ordre :

$$dn_1/dt = -(W + w_{31})n_1 + Nw_{31}. \tag{19.9}$$

On en déduit aisément l'équation de l'inversion $x(t) = n_3(t) - n_1(t) =$ $= N - 2n_1(t)$:

$$dx/dt = -(W + w_{31})x + (W - w_{31})N. \tag{19.10}$$

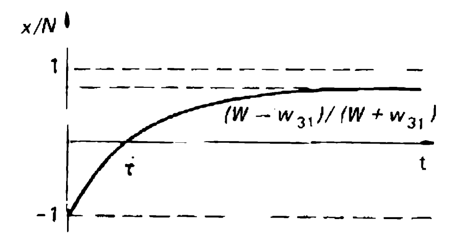


Fig. 19.3. Allure de la variation de l'inversion de population relative en fonction du temps dans un système à trois niveaux soumis à un pompage de vitesse W déclenché à l'instant $t = 0$.

Avec la condition initiale $x(0) = -N$, la solution de cette équation est de la forme

$$x(t) = N\left\{\frac{W - w_{31}}{W + w_{31}} - \frac{2W\exp[-(W + w_{31})t]}{W + w_{31}}\right\}; \qquad (19.11)$$

pour $t \to \infty$ cette solution se ramène à (19.7). L'écriture et l'analyse ultérieure de (19.11) supposent que le pompage est déclenché à l'instant $t = 0$ et reste inchangé par la suite. L'allure de la variation de l'inversion relative x/N en fonction du temps est illustrée par la figure 19.3.

Le temps τ du blanchissement de la transition efficace se déduit de (19.11) en égalant $x(t)$ à zéro :

$$\tau = \frac{1}{W + w_{31}} \ln \frac{2W}{W - w_{31}}. \qquad (19.12)$$

Dans le cas de l'inversion maximale ($W \gg w_{31}$, $n_3 - n_1 = N$), qui est pratiquement irréalisable, le produit $W\tau$ est constant :

$$W\tau = \ln 2. \qquad (19.13)$$

Comme la probabilité des transitions induites par pompage est proportionnelle à l'intensité de pompage, ce produit détermine l'énergie minimale requise pour faire passer le système dans l'état d'absorption négative. Dans le cas général

$$W\tau = \frac{W}{W + w_{31}} \ln \frac{2W}{W - w_{31}}. \qquad (19.14)$$

Le fait que le produit $W\tau$ reste constant pour les grandes intensités de pompage, lorsqu'on peut négliger l'influence de tous les processus de relaxation, a une signification physique simple. Ce produit est proportionnel à l'énergie requise pour faire passer toutes les particules de l'état fondamental sur le niveau laser supérieur (cf. formule (19.7) et fig. 19.3).

Il convient de souligner une nouvelle fois que la nécessité d'une dépense d'énergie préalable servant à créer une inversion de population sur le niveau métastable par rapport à l'état fondamental dans un système optique à trois niveaux d'énergie tient à ce qu'il faut transférer sur le niveau 3 la moitié

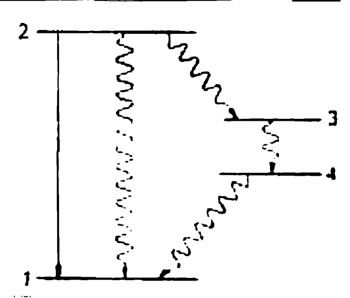


Fig. 19.4. Représentation d'un système à quatre niveaux.

au moins des particules se trouvant sur le niveau 1 en passant par le niveau 2. Dans un système à trois niveaux l'inversion est créée par rapport à l'état fondamental suffisamment peuplé. C'est pour cette raison qu'on recherche les systèmes de niveaux dans lesquels, sous l'action du pompage optique, on réalise une inversion de population par rapport au niveau qui n'est pas peuplé par voie thermique, comme c'est le cas, par exemple, des lasers à gaz excités par chocs électroniques. On arrive à ce résultat en utilisant un système à quatre niveaux d'énergie.

Ecrivons les équations d'évolution des populations dans le système des niveaux d'énergie représenté sur la figure 19.4. On ne tiendra compte que des transitions non radiatives dirigées de haut en bas. On a alors

$$\begin{aligned} dn_2/dt &= (n_1 - n_2)W - n_2(w_{21} + w_{23} + w_{24}), \\ dn_3/dt &= n_2 w_{23} - n_3(w_{31} + w_{34}), \\ dn_4/dt &= n_2 w_{24} + n_3 w_{34} - n_4 w_{41}, \\ n_1 + n_2 &+ n_3 + n_4 = N. \end{aligned} \tag{19.15}$$

Examinons les conditions d'obtention d'une inversion de population stationnaire pour la transition $3 \to 4$. On notera que les équations (19.15) ont été écrites en admettant que le niveau 4 (et à fortiori les niveaux situés plus haut dans l'échelle des énergies) n'est pas occupé par voie thermique. En introduisant la notation $x = n_3 - n_4$, après quelques réarrangements simples, on trouve de (19.15) que pour $x > 0$

$$w_{41} > w_{34} + \frac{w_{24}}{w_{23}}(w_{34} + w_{31}). \tag{19.16}$$

Cette condition d'inversion est qualitativement différente de celle qui a été établie pour un système à trois niveaux (cf. (19.3)) en ce qu'elle est indépendante de W. Si la condition (19.16) est vérifiée, on a toujours $n_3 - n_4 > 0$. Généralement (cf. (19.5)) on a

$$w_{23} \gg w_{24},\ w_{34},\ w_{31}. \tag{19.17}$$

Dans ce cas la condition d'inversion se simplifie :

$$w_{41} > w_{34}. \tag{19.18}$$

Cette dernière inégalité exprime le fait que le niveau laser inférieur doit se dépeupler grâce aux transitions non radiatives vers l'état fondamental plus rapidement qu'il ne se peuple grâce aux transitions ayant pour point de départ le niveau laser supérieur. La condition (19.17) qui favorise l'inversion signifie que le canal de peuplement non radiatif du niveau laser supérieur correspondant aux transitions $2 \to 3$ est le processus de relaxation le plus efficace dans ce système de niveaux d'énergie.

Examinons maintenant la question de l'absence d'un seuil de pompage pour la création d'une inversion de population dans le système à quatre niveaux, ce qui le distingue du système à trois niveaux. Dans les équations d'évolution (19.15) nous avons négligé la probabilité w_{14} de l'occupation non radiative du niveau inférieur. Or cette probabilité n'est pas identiquement nulle. Si l'énergie du niveau 4 est $E_4 = h\nu_{41} \gg kT$, la quantité w_{14} est exponentiellement petite devant w_{41} (cf. formule (3.25)) mais finie. En l'absence de pompage on trouve quelques particules sur le niveau 4. Ce sont ces particules qui déterminent le seuil d'apparition de l'inversion par pompage, seuil qui est d'autant plus bas que l'inégalité $E_4 \gg kT$ est mieux vérifiée. En fait cette dernière inégalité représente la condition de validité des considérations ci-dessus ainsi que le critère de ce que le système considéré comporte quatre niveaux. L'échauffement peut ramener le système à quatre niveaux à un système à trois niveaux avec une forte croissance du seuil. Bref, le seuil de l'apparition d'une inversion de population par pompage est bas lorsque le niveau laser inférieur se trouve au-dessus du niveau fondamental, la différence d'énergie entre ces niveaux étant

$$\Delta E \gg kT. \qquad (19.19)$$

Conformément à ce qui a été dit plus haut, il apparaît que l'inversion stationnaire qui s'établit dans un système à quatre niveaux dépend de l'intensité de pompage tout autrement que dans le cas du système à trois niveaux. En supposant que la condition (19.17) est vérifiée, on tire de (19.15)

$$n_3 - n_4 = N \frac{W(w_{41} - w_{34})}{W(w_{41} + 2w_{34}) + w_{23}w_{34}}. \qquad (19.20)$$

Cette formule montre d'une part que pour $W \ll w_{23}$, ce qui correspond à la situation réelle, l'inversion est proportionnelle à l'intensité de pompage, et d'autre part elle confirme que la condition d'inversion (19.18) est indépendante de l'intensité de pompage. L'ensemble de ces particularités fait que le système à quatre niveaux est qualitativement différent du système à trois niveaux (cf. (19.7)). Lorsque $W \to \infty$ et $w_{41} \gg w_{34}$, l'inversion de population $n_3 - n_4 \to N$.

Ces exemples montrent que le rayonnement de pompage auxiliaire, en modifiant fortement la distribution des populations entre les niveaux de la transition auxiliaire, conduit à une inversion de population entre des

niveaux qui sont liés aux niveaux auxiliaires par des transitions non radiatives. La méthode de pompage radiatif des systèmes à plusieurs niveaux s'est avérée être un moyen puissant et généralement efficace de création de milieux actifs. Dans ce qui suit on aura souvent affaire à ce procédé de pompage. On notera encore qu'en électronique quantique de la gamme radioélectrique ce procédé est largement utilisé pour l'élaboration de dispositifs d'amplification supersensibles (masers UHF paramagnétiques).

Il faut examiner encore une question importante. Dans notre étude de la méthode du rayonnement de pompage auxiliaire, un rôle essentiel revient aux probabilités w_{ik} des transitions non radiatives. Dans la deuxième leçon nous avons introduit, de façon purement phénoménologique, la notion de relaxation non radiative déterminée par l'interaction du centre actif avec le milieu environnant et amenant inexorablement ce centre excité (hors d'équilibre) à l'équilibre avec le milieu environnant. On y avait signalé que le mécanisme réel de cette interaction dépendait du système considéré. Dans le cas des lasers à gaz le mécanisme dominant, sinon unique, de transfert non radiatif de l'énergie d'excitation est celui des chocs en phase gazeuse. Dans ce qui précède on a examiné le rôle de ce mécanisme de transfert d'énergie. Dans les solides les collisions de particules sont exclues, mais leurs interactions avec les phonons, c'est-à-dire avec les vibrations du réseau cristallin, assurent les échanges d'énergie. Les centres actifs, qui généralement sont des ions, dissipent leur excédent d'énergie dans le réservoir vibrationnel du réseau cristallin du solide qui assume le rôle de thermostat dans lequel sont immergés les centres actifs. Les mécanismes élémentaires d'interaction des centres actifs avec les phonons diffèrent suivant l'état des centres dans les cristaux. Mais en gros on peut dire que les échanges d'énergie s'effectuent par interactions dipolaires de différents ordres entre un état électronique ou un état électrono-vibratoire du centre actif et les dipôles électriques qui apparaissent lors des vibrations des atomes du réseau cristallin.

Généralement l'énergie des phonons ne dépasse pas 250 à 500 cm^{-1}. Comme l'énergie des états électroniques est des dizaines de fois plus grande, la relaxation de l'énergie des centres actifs en vibrations du réseau implique plusieurs phonons, autrement dit un seul acte de relaxation donne naissance à plusieurs phonons. La probabilité d'un tel processus diminue à mesure qu'augmente le rapport de l'énergie de l'état qui relaxe à l'énergie des phonons ayant la plus haute fréquence possible dans le solide considéré. (Rappelons que cette fréquence phononique maximale est liée à la température de Debye θ_D par la relation simple : $h\nu_D = k\theta_D$). La conséquence de cet état de choses est que les niveaux énergétiques supérieurs du centre optique relaxent directement au réseau plus lentement que ne le font les niveaux de plus faible énergie. Nous savons que cette circonstance est bénéfique pour l'inversion de population.

Outre la relaxation non radiative de l'énergie du centre d'impureté en vibrations du réseau, dans le cas des systèmes à trois et à quatre niveaux caractérisés par les probabilités w_{21}, w_{31} et w_{41} , un rôle important revient au transfert non radiatif d'énergie d'un niveau excité d'un centre à un niveau excité d'un autre centre (qu'on caractérise par w_{23}, w_{24} et w_{34}). Si la différence d'énergie entre les niveaux est petite devant kT, le transfert d'énergie est efficacement assuré par une interaction dipolaire. Dans le cas d'une différence d'énergie notable, et c'est justement le cas qui nous intéresse ici, la seule interaction dipolaire binaire entre deux centres ne saurait assurer un transfert efficace d'énergie. Dans ce cas le processus de transfert fait intervenir les phonons qui jouent alors le rôle de « troisième corps ». L'interaction devient ternaire et l'excès d'énergie est évacué lors de la relaxation polyphononique en vibrations du réseau, ce qui a pour résultat l'échauffement du corps solide tout entier.

Appelons taux phononique le rapport de la différence d'énergie entre niveaux de centres différents à l'énergie des phonons participant à l'échange d'énergie. Ce qui nous importe c'est le transfert d'énergie du niveau directement excité au niveau laser supérieur. Plus la distance énergétique entre ces niveaux est petite, plus le taux phononique est petit et plus l'efficacité du transfert d'énergie est grande. Dans ces conditions la part d'énergie d'excitation dissipée dans le milieu est petite. D'autre part le moindre taux phononique du processus envisagé permet d'expliquer pourquoi, dans les cas considérés plus haut, la probabilité de transfert non radiatif d'énergie peut être la plus grande de toutes les probabilités w_{ik} figurant dans les équations (19.1) et (19.15).

Remarquons pour conclure que nos considérations qualitatives laissent apparaître une profonde analogie entre les processus de relaxation non radiative des centres actifs et de transfert d'énergie d'excitation entre ces derniers dans le corps solide et les processus collisionnels dans les gaz et le plasma.

Nous pouvons passer maintenant à la description des lasers à solide. L'usage veut qu'on entende par lasers à solide ceux dont la substance active est un diélectrique solide — cristal ou verre dans lequel on a introduit des impuretés isomorphes jouant le rôle de centres actifs. Cet usage est, comme bien d'autres traditions, inconséquent, puisque les cristaux semiconducteurs sont de vrais corps solides, tandis que le verre est un liquide surfondu. Néanmoins les lasers à semiconducteurs forment une classe spéciale en vertu de leur procédé de pompage particulier et on réserve le nom de lasers à solide aux lasers à diélectriques cristallins et à verres dopés.

Le milieu actif des lasers à solide est une certaine matrice contenant des impuretés de même espèce ou d'espèces différentes, se comportant comme des centres actifs ou activateurs. Il est facile de formuler les condi-

tions auxquelles doivent satisfaire les matrices des éléments actifs des lasers. Tout d'abord la matrice doit se laisser facilement activer, ce qui signifie que l'impureté de dopage doit s'y incorporer en quantités contrôlables sans affecter les propriétés optiques et mécaniques de la matrice. En outre les probabilités des transitions de relaxation non radiatives concernant les centres d'impuretés doivent favoriser l'inversion de population.

La matrice doit être optiquement homogène et transparente pour l'émission générée ou amplifiée ainsi que pour le rayonnement de pompage. Dans les lasers puissants le milieu actif est soumis à une irradiation intense dont une part notable est transformée en chaleur. Il s'ensuit que le matériau de la matrice doit posséder une grande conductibilité thermique, il doit résister à l'échauffement et ses propriétés optiques ne doivent dépendre que faiblement de la température. D'autre part le matériau doit avoir une bonne résistance mécanique et doit être chimiquement stable. Ni les propriétés optiques ni les propriétés photochimiques de la matrice ne doivent pas être affectées par des flux lumineux de grande intensité, que ce soit en continu ou en impulsions, dans les gammes des longueurs d'onde du rayonnement de pompage et de l'émission générée (ou amplifiée).

On notera aussi que les technologies de production, d'usinage et de traitement optique de la matrice de l'élément actif des lasers à solide doivent être bien au point.

Actuellement il existe des lasers utilisant plus de 250 matériaux cristallins et plusieurs dizaines de verres différents.

Un exemple remarquable de laser à solide est le laser à rubis qui a été réalisé en 1960 par T. Maiman. La substance active est le rubis qui est une solution solide α-Al_2O_3 : Cr_2O_3. Les cristaux purs de la variété α du corindon Al_2O_3 sont appelés saphir blanc. Ils sont transparents dans une large gamme de longueurs d'onde depuis l'ultraviolet lointain jusqu'à 5-6 μm. Dans le rubis de bijouterie la concentration des ions chrome atteint plusieurs pour cent et c'est ce qui lui confère une teinte rouge. Les cristaux pour laser contiennent près de 0,05 % d'ions Cr^{3+} et ils ont une teinte rosée. La concentration absolue des ions chrome est dans ce cas égale à $1{,}6 \cdot 10^{19}\ cm^{-3}$.

La croissance des cristaux de rubis peut s'effectuer par la méthode de Verneuil (cristallisation progressive de la poudre composée de $Al_2O_3 + Cr_2O_3$ qu'on fait tomber par petites portions dans la zone de fusion) ou par de nouvelles technologies permettant de produire de gros cristaux cylindriques de rubis (diamètre 20 à 25 mm, longueur 250 à 300 mm) ou des cristaux d'autres configurations.

Le corindon possède d'excellentes propriétés mécaniques, thermiques, diélectriques et optiques. Il possède une grande conductibilité thermique

qui, à 300-400 K, est d'un ordre de grandeur plus petite que celle des métaux et se rapproche de la conductibilité thermique des métaux à la température de l'hélium liquide. Le corindon possède une symétrie cristalline rhomboédrique et son axe de symétrie de troisième ordre coïncide avec l'axe optique du cristal (axe *c*). Pour l'onde ordinaire l'indice de réfraction est égal à 1,769 et pour l'onde extraordinaire il est égal à 1,760 (raie *D* du sodium).

L'utilisation du rubis en électronique quantique a été suggérée par A. Prokhorov dès 1956 (masers paramagnétiques, amplificateurs quantiques UHF).

Dans les cristaux de rubis, i.e. de corindon dopé avec des ions chrome, ceux-ci sont les centres d'impureté actifs. Dans le réseau de Al_2O_3 les ions Cr^{3+} se substituent de façon isomorphe aux ions Al^{3+} et occupent donc des sites où ils sont entourés de six ions O^{2-} placés aux sommets d'un octaèdre. Cet entourage crée un champ électrique qui affecte le niveau d'énergie de l'ion Cr^{3+}. Les ions Al^{3+} qui en sont plus éloignés exercent sur l'ion Cr^{3+} une influence moins marquée. On aborde ici la question du spectre des ions d'impureté introduits dans les cristaux.

Les impuretés de dopage des cristaux utilisés en électronique quantique sont les ions des éléments de transition. Les atomes de ces éléments possèdent des couches électroniques internes incomplètes. Dans le système périodique des éléments on trouve cinq groupes d'éléments de transition, à savoir : les groupes du fer, du palladium, des terres rares, du platine et des actinides.

Dans les groupes principaux des éléments l'occupation des couches électroniques s'effectue de façon rigoureusement consécutive ; pour chaque valeur du nombre quantique principal, les électrons viennent occuper d'abord la couche *s*, puis la couche *p*. Lorsqu'on en arrive à la couche *d*, cet ordre strict est mis en défaut. L'occupation de la couche *d* s'effectue parallèlement à l'occupation de la couche *s* du nombre quantique principal suivant, autrement dit l'occupation de la couche 3*d* est en compétition avec celle de la couche 4*s*, l'occupation de la couche 4*d* avec celle de la couche 5*s*, l'occupation de la couche 5*d* avec celle de la couche 6*s*. Dans les groupes du fer, du palladium et du platine, ce sont respectivement les couches 3*d*, 4*d* et 5*d* qui sont ainsi remplies d'électrons. L'occupation de la couche 4*f* de l'enveloppe électronique des atomes des terres rares s'effectue parallèlement à l'occupation des couches 5*d* et 6*s*.

Sans nous attarder à l'énumération de tous les éléments de transition, indiquons à titre d'exemple les configurations électroniques de quelques éléments du groupe du fer et du groupe des terres rares :

$$^{23}\mathrm{V} : (\mathrm{Ar})3d^3 4s^2, \quad ^{59}\mathrm{Pr} : (\mathrm{Xe})4f^3 6s^2,$$

$$^{24}\mathrm{Cr} : (\mathrm{Ar})3d^5 4s, \quad ^{60}\mathrm{Nd} : (\mathrm{Xe})4f^4 6s^2,$$

$$^{25}\mathrm{Mn} : (\mathrm{Ar})3d^5 4s^2, \quad ^{61}\mathrm{Pm} : (\mathrm{Xe})4f^5 6s^2,$$
$$^{26}\mathrm{Fe} : (\mathrm{Ar})3d^6 4s^2, \quad ^{62}\mathrm{Sm} : (\mathrm{Xe})4f^6 6s^2. \qquad (19.21)$$

Les cristaux et les verres dopés, utilisés en électronique quantique, le sont avec des ions et non pas des atomes neutres des éléments adéquats. La formation de la configuration électronique et des états des ions des éléments de transition n'est pas aussi évidente que dans le cas des éléments des groupes principaux. Dans le cas des éléments de transition, l'occupation ordonnée des couches électroniques successives étant perturbée, l'ion de chaque élément suivant n'est pas semblable à l'atome de l'élément précédent. Le rubis est une solution solide $Al_2O_3 : Cr_2O_3$, ce qui signifie que l'ion Cr^{3+} est incorporé dans son réseau cristallin. La configuration électronique de l'atome de chrome neutre $(\mathrm{Ar})3d^5 4s$ se transforme en la configuration $(\mathrm{Ar})3d^3$ de l'ion chrome trivalent. Il s'ensuit que le spectre de l'ion Cr^{3+} est déterminé par les trois électrons $3d$. Il convient de discuter ici un aspect important de la question.

Dans les éléments de transition du groupe du fer, c'est la couche interne $3d$ qui se remplit progressivement tout en étant soumise à l'effet d'écran exercé par la couche externe $4s$. Les propriétés optiques et chimiques de ces éléments sont déterminées dans une large mesure par la couche incomplète $3d$, mais comme cette couche est soumise à l'effet d'écran, les propriétés des différents éléments présentent de nombreuses analogies chaque fois que ce sont les atomes neutres qui interagissent avec l'environnement. Les ions trivalents de ces éléments sont, eux, dépourvus de la couche électronique qui fait écran. En conséquence les spectres de ces ions incorporés de façon isomorphe dans des matrices cristallines ne sont plus semblables les uns aux autres, se distinguent des spectres des ions libres, et pour un ion donné le spectre dépend de la matrice dans laquelle il a été incorporé.

La situation est très différente pour les éléments de transition du groupe des terres rares. Les propriétés optiques et chimiques des éléments des terres rares sont déterminées par la couche $4f$ qui, étant plus profonde, subit un effet d'écran plus important. La configuration de l'atome d'argon, qu'on a fait figurer à l'aide du symbole (Ar) dans les configurations électroniques (19.21) des éléments de transition du groupe du fer, est relativement simple. La configuration du symbole (Ar) est $1s^2 2s^2 2p^6$ et ne comporte pas d'électrons ayant des nombres quantiques principaux supérieurs à ceux des électrons appartenant à la couche incomplète $3d$ ou à la couche $4s$ qui entoure la couche $3d$. Ce résultat est normal, puisque le groupe du fer est le premier groupe de transition du tableau périodique. Les éléments du groupe des terres rares font suite au xénon. L'atome de xénon, beaucoup plus lourd que l'atome d'argon, a une configuration notablement plus compliquée, puisqu'elle contient, en plus de la configuration des atomes de tous les gaz

rares qui le précèdent (hélium, néon, argon, krypton), des électrons $5s$ et $5p$. On peut donc l'écrire sous la forme $(\mathrm{Kr})5s^2 5p^6$. Il s'ensuit que la nouvelle couche électronique qui apparaît chez les atomes des terres rares est soumise à l'effet d'écran exercé par deux électrons $5s$ et six électrons $5p$. L'important effet d'écran auquel est soumise la couche $4f$ explique la similitude des propriétés chimiques et des spectres des éléments des terres rares. Dans les ions trivalents de ces éléments la couche $4f$ est toujours soumise à l'effet d'écran exercé par deux électrons $5s$ et six électrons $5p$. C'est pour cela que les actions extérieures n'affectent que faiblement les spectres des atomes neutres et des ions des éléments des terres rares. Lorsqu'on incorpore des ions trivalents des terres rares dans des matrices cristallines différentes, les spectres de ces ions ne diffèrent pratiquement pas. C'est le cas de l'ion Nd^{3+} dont le spectre est déterminé par trois électrons $4f$ $((\mathrm{Xe})4f^3)$ et qui présente pour notre sujet un intérêt certain.

L'interaction des électrons $3d$ de l'ion Cr^{3+} ou celle des électrons $4f$ de l'ion Nd^{3+} avec les champs électriques créés par les matrices des matériaux actifs pour lasers détermine le système des niveaux des lasers correspondants.

Les états fondamentaux des ions libres sont déterminés par la règle de Hund, selon laquelle, pour une configuration électronique donnée, l'état ayant la plus petite énergie est celui pour lequel le spin total S possède la plus grande de toutes les valeurs possibles et qui pour cette valeur de S possède la plus grande valeur possible du moment orbital $L = k(2l - k + 1)/2$, où k est le nombre d'électrons de la couche électronique remplie moins qu'à moitié. Pour l'ion Cr^{3+}, i.e. pour les trois électrons $3d$, la valeur maximale de S est $S = 3/2$, $k = 3$, $l = 2$ et $L = 3(4 - 3 + 1)/2 = 3$. Comme $L = 3$, le terme est désigné par la lettre F. Sa multiplicité est $2S + 1 = 4$. Cela signifie que le nombre quantique J peut prendre quatre valeurs comprises entre $L + S$ et $L - S$: 9/2, 7/2, 5/2 et 3/2. Si la couche est occupée moins qu'à moitié, l'état fondamental correspond à $J = L - S$. (Dans le cas contraire $J = L + S$.) Comme la couche d peut contenir 10 électrons, la couche en voie d'occupation de l'ion Cr^{3+} est plus qu'à moitié vide, ce qui implique qu'à l'état fondamental $J = 3/2$. On trouve ainsi que l'état fondamental de l'ion Cr^{3+} a pour symbole

$$^4F_{3/2}. \qquad (19.22)$$

En ce qui concerne l'ion Nd^{3+} comportant dans la couche incomplète $4f$ 3 électrons sur les 14 possibles, l'application de la règle de Hund montre qu'à l'état fondamental cet ion est caractérisé par les valeurs suivantes : $S = 1/2$, $L = 3(6 - 3 + 1)/2 = 6$, $J = L - S = 9/2$ et cet état a pour symbole

$$^4I_{9/2}. \qquad (19.23)$$

Pour les lasers solides les états fondamentaux des ions libres ne présentent de l'intérêt que dans la mesure où leur connaissance permet de caractériser la nature et l'intensité des interactions des ions d'impureté avec le champ cristallin de la matrice où cet ion est incorporé.

Vingtième leçon. LASERS À RUBIS ET À NÉODYME

Champ cristallin. Niveaux d'énergie de l'ion chrome incorporé au corindon. Le laser à rubis. Niveaux d'énergie de l'ion néodyme. Le laser à néodyme. Le verre pour lasers : homogénéité optique, tenue au rayonnement.

Les ions d'impureté incorporés de façon isomorphe dans le réseau cristallin de la matrice y sont soumis à l'action du champ cristallin. Comme les ions d'impureté se substituent aux ions du réseau hôte, dans un cristal parfait ils se trouveront tous dans des conditions identiques. En principe le champ cristallin est le même pour tous les ions ayant même intensité, même orientation, même symétrie, et perturbant également les niveaux d'énergie de tous les ions. Plus le cristal est proche de la perfection, plus faibles sont les variations de l'intensité du champ cristallin aux emplacements des ions et plus faible est l'élargissement des niveaux d'énergie provoqué par le champ cristallin. Il est évident que le manque d'homogénéité spatiale du champ détermine un élargissement non homogène des raies des transitions correspondantes pour le cristal tout entier (voir leçon 2). Dans les matrices en verre l'élargissement non homogène est particulièrement important.

Rappelons que dans certains cristaux on trouve plusieurs sites cristallographiques non équivalents pouvant être occupés par les ions d'impureté. Dans ces cas on voit apparaître plusieurs sous-systèmes d'ions non équivalents, chacun d'eux possédant son propre spectre, et à chacun d'eux peuvent être appliquées les considérations ci-dessus.

Considérons à nouveau le rubis, i.e. le cristal de corindon dopé au chrome.

Dans l'empilage des billes représentant les ions O^{2-} on trouve deux sortes de sites interstitiels — les sites tétraédriques et les sites octaédriques. Les ions Al^{3+} n'occupent que les deux tiers de tous les sites octaédriques pour raison de compensation des charges électriques. Un site octaédrique est une cavité dans laquelle on peut inscrire un octaèdre régulier, dont les six sommets seront chacun en contact avec l'une des six billes représentant les ions oxygène. Dans ces cavités les six ions oxygène créent un intense champ à symétrie cubique. A ce champ cubique vient se superposer une faible composante trigonale. La raison en est que chaque troisième cavité restant vide dans une structure cristalline régulière, les ions Al^{3+} sont disposés par paires, chaque ion ayant pour voisin un ion de même espèce d'un

seul côté, et de l'autre côté il avoisine avec une cavité vide. Par suite les forces de répulsion électrostatiques s'exerçant entre ions de même signe ne sont pas compensées et les ions s'écartent l'un de l'autre suivant une certaine direction qui, dans le cas d'un empilement hexagonal compact des ions oxygène, est un axe de troisième ordre. La symétrie du champ cristallin s'exerçant sur un ion aluminium s'en trouve modifiée et à l'intense champ à symétrie cubique se superpose une faible composante du champ à symétrie trigonale. Comme les ions Cr^{3+} se substituent aux ions Al^{3+} ils se trouvent soumis à l'action de ce champ.

En raison de l'effet Stark le champ électrique cristallin supprime la dégénérescence, déplace et décompose les termes de l'ion libre. L'analyse du comportement des termes des ions dans des champs d'intensité et de symétrie différentes est réalisée par la méthode de la théorie des perturbations complétée par les méthodes de la théorie des groupes. Pour le terme $^4F_{3/2}$ caractérisant l'ion libre Cr^{3+}, le calcul effectué dans l'approximation du champ fort a permis d'obtenir les mêmes spectres que ceux que fournit l'expérience.

Dans le cas de l'ion libre le moment de spin **S** s'additionne avec le moment orbital **L** et la somme $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ est le moment total de la quantité de mouvement qui se conserve dans le cas de l'ion ou de l'atome libre. Chaque état **J** est $2J + 1$ fois dégénéré par rapport à l'énergie. Dans le champ électrostatique cristallin la situation est différente puisque les niveaux énergétiques des ions dépendent, en raison de l'effet Stark, de l'intensité et de la symétrie de ce champ. Dans ce dernier cas on doit envisager les cas limites du champ cristallin faible et du champ cristallin fort.

En présence d'un champ faible les moments de spin et orbitaux des électrons restent liés (un champ faible ne parvient pas à rompre la liaison *LS*). Cela signifie que l'éclatement des niveaux énergétiques des ions dû à l'effet Stark est petit devant la décomposition de sa structure fine (autrement dit devant la décomposition des multiplets). Le vecteur **J** se conserve et à ses différentes projections sur la direction du champ électrique correspondent $2J + 1$ sous-niveaux d'énergie. La faible action exercée par le champ peut être assimilée à une perturbation de la structure en multiplet existant en l'absence de champ. On a affaire à ce cas lorsque les ions d'impureté sont des ions d'éléments de transition ayant des couches incomplètes profondes et bien protégées par des couches électroniques faisant écran contre le champ cristallin. Ce sont notamment les éléments du groupe des terres rares, dont la couche incomplète est la couche interne $4f$, et les éléments du groupe des actinides avec la couche incomplète $5f$ (cf. leçon 19).

Le champ fort brise la liaison *LS* lorsque les électrons de la couche incomplète de l'ion se trouvent à faible profondeur par rapport à la couche externe et l'effet d'écran est inexistant. Dans ces conditions l'interaction des électrons avec le champ cristallin est plus forte que la liaison spin-orbite.

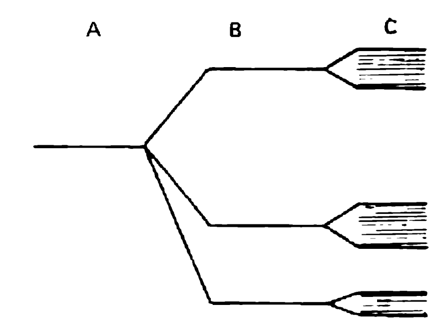


Fig. 20.1. Levée progressive de la dégénérescence par les champs cristallins de l'ion chrome : *A* — ion libre, *B* — champ à symétrie cubique, *C* — champs à symétries cubique et trigonale superposés.

Lorsque la liaison *LS* est rompue, les vecteurs **L** et **S** exécutent séparément des mouvements de précession dans le champ extérieur et ne forment plus de vecteur moment total. Les énergies des différents sous-niveaux sont déterminées par les projections M_L et M_S sur la direction du champ. La liaison spin-orbite pourra être prise en compte comme une perturbation après qu'on aura trouvé la décomposition des niveaux énergétiques par le champ cristallin supprimant les dégénérescences orbitale et de spin. Le champ fort se trouve réalisé dans le cas des ions des éléments de transition du groupe du fer, dont la couche 3*d* n'est recouverte d'aucune autre couche électronique et se trouve directement soumise à l'action du champ cristallin.

Ces considérations illustrent une nouvelle fois la différence entre les spectres des ions d'impuretés appartenant au groupe les terres rares et au groupe du fer.

Reprenons l'étude du rubis. L'état fondamental $^4F_{3/2}$ de l'ion Cr^{3+} correspond à une dégénérescence orbitale heptuple ($L = 3$) et à une dégénérescence de spin quadruple. Le degré de dégénérescence résultant est égal à $7 \cdot 4 = 28$. L'intense champ cubique décompose l'état 28 fois dégénéré en deux triplets orbitaux et un singulet orbital (fig. 20.1). La composante trigonale relativement faible du champ cristallin lève encore la dégénérescence en décomposant chacun des triplets 12 fois dégénérés en 6 doublets. Le singulet orbital se décompose en donnant un doublet dont les composantes sont distantes de 0,38 cm^{-1}. Dans ce dernier doublet la double dégénérescence de spin qui subsiste après qu'on a tenu compte des champs électriques est levée par le champ magnétique extérieur (doublets de Kramers), ce qui donne naissance au système des niveaux d'énergie qui sont utilisés dans les études de la résonance électronique paramagnétique ainsi que pour l'élaboration d'amplificateurs quantiques paramagnétiques UHF (masers paramagnétiques).

La figure 20.1 montre que les états qui résultent de la décomposition trigonale des triplets orbitaux sont disposés notablement au-dessus du singulet. Les durées de vie des doublets de hautes énergies sont petites (moins

de 100 ns), aussi se recouvrent-ils en donnant naissance à de larges bandes d'absorption sur les longueurs d'onde 410 et 550 nm.

Tels sont les niveaux d'énergie de l'état fondamental $^4F_{3/2}$ de l'ion Cr^{3+} se trouvant soumis au champ cubique (et trigonal) créé par ses plus proches voisins dans le réseau du corindon Al_2O_3. Chez l'ion Cr^{3+} libre le terme le plus proche du terme fondamental ^4F est le terme ^2G ($S = 1/2$, $L = 4$). Sa dégénérescence (il est dégénéré 18 fois) est partiellement levée dans le champ de symétrie cubique. Le niveau ^2G se décompose en quatre sous-niveaux. L'un de ces sous-niveaux est disposé un peu au-dessous de la raie verte de 550 nm de l'état fondamental de l'ion Cr^{3+}. Le champ trigonal et la liaison spin-orbite décomposent ce sous-niveau en deux autres distants de 29 cm^{-1}. Les transitions électrodipolaires de ce doublet à l'état fondamental sont interdites, mais cette interdiction est partiellement levée par l'impureté des niveaux ; de ce fait le doublet est métastable.

On obtient ainsi le système des niveaux d'énergie de l'ion Cr^{3+} incorporé à α-Al_2O_3 (système des niveaux énergétiques du rubis) qui est représenté sur la figure 20.2 avec les notations les plus utilisées de nos jours. Les raies de transition désignées par les lettres *R, U, B, Y* (ruby — rubis) sont disposées dans l'ordre des nombres d'onde croissants. Notons que les raies *B, U* et *Y* sont observées à l'absorption, tandis que la raie *R* est la raie de luminescence qui confère au rubis sa coloration. On tient compte de la décomposition de la raie *R* de luminescence en introduisant les notations R_1 et R_2 pour les composantes spectrales de ce doublet distantes de 29 cm^{-1}. A la température ordinaire, la longueur d'onde de la raie R_1 est égale à 694,3 nm et celle de la raie R_2 à 692,8 nm.

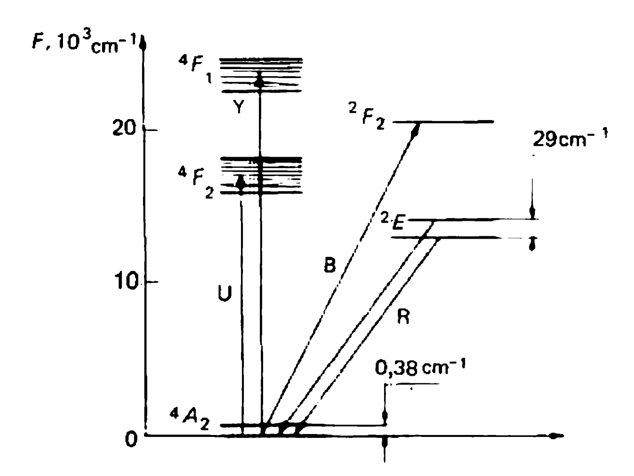


Fig. 20.2. Représentation des niveaux d'énergie du rubis.

Avec le système des niveaux représenté sur la figure 20.2 le laser à rubis fonctionne selon le schéma à trois niveaux, où le niveau 1 est l'état fondamental $^4A_2$, le niveau 2 est constitué par les bandes $^4F_2$ et $^4F_1$, le niveau 3 par le doublet ^2E. La durée du transfert non radiatif de l'énergie depuis les bandes $^4F_2$ et $^4F_1$ vers le doublet ^2E est égale à 100 ns, tandis qu'entre les sous-niveaux $\overline{E}$ et $2\overline{A}$ du doublet se produit un rapide échange d'énergie par relaxation (durée de 100 ns).

Si l'impulsion de pompage dure plus de 100 ns, l'équilibre thermique arrive à s'établir entre les sous-niveaux du niveau 3. C'est pour cela qu'on observe généralement l'émission sur la raie R_1 (le sous-niveau correspondant est plus peuplé et l'élément de matrice de la transition $\overline{E} \rightarrow {}^4A_2$ est un peu plus grand). A la température ordinaire la largeur de la raie d'amplification n'est que de 11 cm^{-1} et à la température de l'azote liquide la raie devient tellement fine ($\sim 0{,}3$ cm^{-1}) qu'on arrive à discerner la structure isotopique due aux atomes ^{50}Cr, ^{52}Cr, ^{53}Cr, ^{54}Cr dans le spectre d'émission. Comme toute variation de la température du cristal fait varier les paramètres réticulaires, la fréquence d'émission varie aussi. Entre +200°C et −200°C la variation de la longueur d'onde de l'émission est égale à $\Delta\lambda = 2$ nm.

Dans les bandes de pompage U et Y l'absorption est égale à 2-3 cm^{-1}. Cela implique que le diamètre des tiges de rubis ou l'épaisseur des plaques de rubis, utilisées pour assurer un éclairage de pompage bilatéral, ne doivent pas dépasser 2 à 2,5 cm ; si cette valeur est dépassée, l'éclairage de pompage ne pourra pas pénétrer assez efficacement à l'intérieur du cristal et le milieu actif serait alors fortement inhomogène suivant la section transversale, ce qui affectera les caractéristiques de l'émission laser.

Du point de vue spectral les bandes de pompage ne sont pas structurées, ont une largeur $\Delta\lambda \approx 100$ nm et sont centrées sur $\lambda = 410$ nm et $\lambda = 560$ nm. La valeur de seuil de la densité volumique de l'énergie de pompage dans la bande verte est d'environ 3 J/cm^3.

Lorsque la valeur de seuil est largement dépassée dans les impulsions d'émission de longue durée (~ 1 ms), l'énergie massique de l'émission atteint 0,2 à 0,25 J/cm^3. Le coefficient d'amplification linéaire des lasers à rubis atteint 0,2 à 0,25 cm^{-1}.

Généralement le pompage est assuré par l'émission de lampes flash de grande puissance. Les lampes les plus performantes sont les lampes à xénon ; leur rendement atteint 50%, leur température effective est de 6500 K dans le vert et de 10 000 K dans le violet. Le type de construction du dispositif d'éclairage revêt naturellement une grande importance. On notera que grâce à la présence de larges bandes d'absorption U et Y dans le système de niveaux d'énergie du rubis fonctionnant selon le principe des trois niveaux (cf. fig. 20.2), on peut y réaliser l'inversion à l'aide d'un éclairement

de pompage non monochromatique. En fait le rubis assure la conversion de l'énergie lumineuse d'une source à haute température à spectre d'émission continu en un rayonnement monochromatique. C'est un fait de grande importance.

Dans les lasers à rubis de grande puissance on utilise des tiges de 2 à 3 cm de diamètre et de 20 à 30 cm de long. Dans les conditions usuelles de croissance des cristaux, l'axe *c* du cristal fait un angle de 90 à 60° avec l'axe de la tige. L'émission que fournit un tel cristal possède une polarisation rectiligne. Le vecteur du champ **E** du rayonnement émis est perpendiculaire au plan contenant l'axe *c* et l'axe de la tige. La croissance de cristaux dont l'axe coïncide avec l'axe *c* est possible mais présente de grosses difficultés technologiques. Le rayonnement émis par des tiges dont l'axe est confondu avec l'axe *c* n'est pas polarisé.

La qualité des cristaux se reflète sur les paramètres du laser, sur la divergence de son émission, sur le seuil d'auto-amorçage, sur son régime de fonctionnement, etc. La grande conductibilité thermique du rubis permet de faire fonctionner les lasers en régime d'impulsions à grande fréquence de répétition des impulsions. Les cristaux de bonne qualité peuvent fonctionner en régime continu à la température ordinaire (pompage par lampes à vapeur de mercure).

Tous les procédés de l'électronique quantique, tel le procédé de déclenchement de Q (émission d'impulsions géantes d'une durée de 10 à 100 ns), le verrouillage des modes, le gain en puissance, sont applicables aux lasers à rubis.

On a déjà indiqué plusieurs fois que le principal inconvénient du laser à rubis est qu'il utilise un système à trois niveaux. C'est un inconvénient inhérent au système de niveaux de l'ion chrome trivalent.

Le système à quatre niveaux a été mis en œuvre d'abord avec l'ion uranium trivalent U^{3+} incorporé dans la fluorine CaF_2 ; le laser correspondant ($\lambda = 2{,}51\ \mu m$) fonctionna à 77 K, mais on ne le développa pas, car les ions des éléments du groupe des terres rares offraient plus de potentialités. La couche incomplète $4f$ de ces ions se trouve plus près du noyau atomique que la couche $3d$ des éléments du groupe du fer et la couche $5f$ des actinides. Nous avons déjà mentionné que la couche $4f$ était protégée par les couches $5s$ et $5p$ qui font écran. De ce fait la position des niveaux des ions de ces éléments ne dépend que faiblement de la matrice dans laquelle ils sont incorporés. Les raies de luminescence correspondant aux transitions entre états de la couche $4f$ des ions des terres rares sont fines. Ces ions possèdent des bandes d'absorption intenses correspondant aux transitions $4f \to 5d$ qui conviennent fort bien au pompage des milieux actifs.

Les ions bivalents Dy^{2+}, Tm^{2+}, Sm^{2+}, incorporés à la fluorine notamment, donnent lieu à des émissions dans l'infrarouge proche et dans la par-

tie visible du spectre. Ces régions spectrales sont couvertes aussi par les ions trivalents Er, Ho, Pr, Tm, Nd, etc.

C'est l'ion Nd^{3+} qui présente le plus d'intérêt, car il rend actives de nombreuses matrices où on l'incorpore. Parmi toutes les matrices ce sont les cristaux de grenat d'yttrium-aluminium $Y_3Al_5O_{12}$ et les verres qui conviennent le mieux. Le pompage fait passer les ions Nd^{3+} de l'état fondamental $^4I_{9/2}$ dans des états appartenant à des bandes relativement étroites qui se comportent en qualité de niveau laser supérieur. Ces bandes sont constituées par un ensemble d'états excités qui se recouvrent mutuellement ; la position et la largeur de ces bandes varient quelque peu lorsqu'on passe d'une matrice à une autre. L'énergie d'excitation accumulée par pompage dans les bandes de pompage est rapidement transférée sur le niveau métastable $^4F_{3/2}$ (fig. 20.3). Dans les cristaux de grenat la durée de vie de ce niveau est égale à 0,2 ms et dans le verre, à 0,7 ms. C'est la transition laser $^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ (λ = 1,06 μm) qui possède la plus grande probabilité. L'intervalle énergétique entre les états $^4I_{11/2}$ et $^4I_{9/2}$, égal à 2000 cm^{-1} environ, détermine le fonctionnement du laser à néodyme sur quatre niveaux.

Plus les bandes d'absorption sont proches du niveau $^4F_{3/2}$, plus le rendement de l'émission est grand. Un avantage important des cristaux de grenat d'yttrium-aluminium est l'existence d'une intense raie d'absorption rouge.

Dans les verres la raie de luminescence sur 1,06 μm subit un élargissement non homogène important ($\Delta\lambda \approx 30$ nm) du fait de la non-homogénéité des champs électrostatiques créés par les plus proches voisins de l'ion Nd^{3+}. Notons que dans les cristaux de grenat l'élargissement homogène n'est que de 0,7 nm environ.

L'important élargissement non homogène de la raie d'émission fait que le verre à néodyme possède une amplification moindre et les lasers qui l'utilisent sont plus riches en modes que les lasers à grenat dopé avec le néodyme. Or, tandis que dans les cristaux de grenat d'yttrium-aluminium

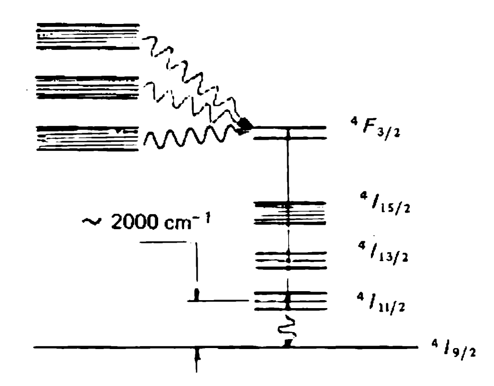


Fig. 20.3. Représentation des niveaux d'énergie de l'ion néodyme.

on ne peut substituer de façon stœchiométrique plus de 1,5 % d'ions Nd^{3+} aux ions Y^{3+}, dans les verres on peut incorporer jusqu'à 6 % de centres actifs*.

En général les lasers à grenat et à verre dopés par le néodyme ont des applications différentes. En raison de la grande conductibilité thermique et de la grande homogénéité des cristaux de grenat, les lasers à grenat peuvent fonctionner en régime continu et en régime d'impulsions périodiquement répétées et débiter des puissances d'émission moyennes de plusieurs centaines de watts. En raison de volumes plus importants et de plus grandes concentrations en néodyme, le verre peut accumuler de grandes quantités d'énergie. C'est pour cela que c'est le verre qui est utilisé en qualité de milieu actif pour les lasers à impulsions de grande énergie. En impulsions l'énergie peut atteindre plusieurs dizaines de kilojoules.

Dans le cas où c'est la qualité de l'émission qui importe surtout, on associe un oscillateur d'excitation à un amplificateur de puissance. L'oscillateur d'excitation est alors bien souvent un laser à grenat et l'amplificateur de puissance (ou le dernier étage d'un amplificateur de puissance à plusieurs étages) est un laser à verre à néodyme.

Les lasers à néodyme fonctionnent dans une large gamme des régimes d'émission, en commençant par le régime continu jusqu'au régime d'impulsions de durée 0,5 ps. Cette dernière est obtenue par la méthode de verrouillage des modes dans une large raie d'amplification caractéristique des verres de laser.

Toutes les méthodes de l'électronique quantique élaborées pour contrôler les propriétés de l'émission laser sont utilisées dans les lasers à néodyme, ainsi que dans les lasers à rubis. Outre le fonctionnement dit à mode libre, qui dure pratiquement pendant toute la durée de l'impulsion de pompage, on utilise beaucoup le régime à déclenchement de Q et le régime avec accrochage de mode (avec autoverrouillage de modes).

En régime de mode libre la durée des impulsions émises est de 0,1 à 10 ms, tandis que la puissance dans le montage à amplification de puissance atteint plusieurs kilojoules. Dans le cas de lasers déclenchés la durée caractéristique des impulsions représente près de 10 ns si le déclenchement de Q est assuré par une cellule électro-optique. On a représenté sur la figure 20.4 le schéma de montage d'un laser à néodyme à déclenchement de Q. L'énergie d'émission caractéristique d'un laser de ce type est de 1 à 2 J.

Pour obtenir des impulsions encore plus courtes, on utilise des filtres

* Dans les verres au phosphate de lithium et de lanthane, on peut remplacer la presque totalité du lithium par du néodyme, de sorte que la concentration de ce dernier peut atteindre $(2 \text{ à } 3)\cdot 10^{21}\ cm^{-3}$. Dans la leçon suivante on indiquera les possibilités d'accroître la concentration des centres actifs dans les cristaux et dans les verres.

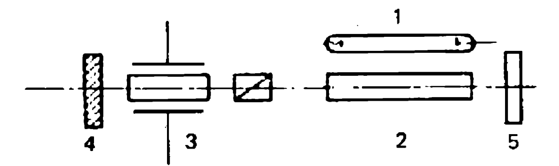


Fig. 20.4. Schéma d'un laser à déclenchement de Q : *1* — lampe de pompage, *2* — tige de matériau actif, *3* — modulateur constitué par un prisme de Glan et une cellule de Pockels, *4* — miroir opaque, *5* — miroir de sortie semi-transparent.

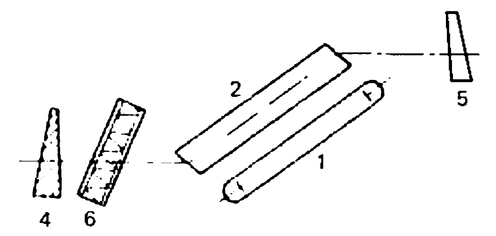


Fig. 20.5. Schéma d'un laser à autosynchronisation des modes (mêmes notations que sur la figure 20.4). Le filtre saturable *6* est disposé auprès du miroir opaque 4.

saturables aussi bien pour déclencher le facteur de surtension (0,1 à 10 ns) que pour le verrouillage des modes (1 à 10 ps). La figure 20.5 représente le schéma d'un laser à autosynchronisation des modes, assurée par un filtre saturable pour l'émission d'impulsions d'une durée de quelques picosecondes. Afin que la cavité résonnante du laser ne possède qu'une seule période nettement marquée de battements de modes, les faces des éléments optiques font un petit angle avec la normale à l'axe optique de la cavité, et les faces d'entrée et de sortie de l'élément actif sont taillées à l'angle de Brewster par rapport à l'axe optique de la cavité. Ces mesures permettent d'exclure les réflexions parasites du rayonnement se propageant entre les miroirs de la cavité ou assurent la déviation des rayons réfléchis de l'axe optique de la cavité afin d'éviter la formation de cavités supplémentaires ayant leurs propres périodes de battements des modes. Dans les générateurs lasers de ce type l'énergie du train d'impulsions de modes verrouillés est de 1 à 2 J.

Il nous reste à donner quelques précisions sur les verres pour lasers.

Le verre est un excellent matériau optique dont la technologie de fabrication est bien au point. Le verre se prête bien à la fabrication de pièces de toutes formes et de toutes dimensions depuis les fibres de quelques microns de diamètre jusqu'aux disques de plusieurs mètres de diamètre. Le principal avantage du verre est son excellente homogénéité optique. Le gradient de l'indice de réfraction d'un verre pour laser est égal à $\pm(0,5$ à $2)\cdot 10^{-8}\,\mathrm{cm}^{-1}$. Malheureusement la conductibilité thermique du verre est faible. Le rayonnement de pompage échauffe le verre de façon non uni-

forme et comme sa conductibilité thermique est petite, il s'y établit un champ de température non uniforme et il devient le siège de tensions thermo-élastiques.

Pour que l'émission laser présente une haute directivité il faut que l'homogénéité optique du verre subsiste pendant l'émission, ce qui implique que la constante thermo-optique du verre

$$W = \beta + \alpha(n - 1), \tag{20.1}$$

où $\beta = dn/dT$ est le coefficient de température de l'indice de réfraction n et α le coefficient de dilatation thermique, soit aussi petite que possible. Par un choix convenable de la composition chimique du verre on peut réduire W jusqu'à des valeurs inférieures à $10^{-7}\,K^{-1}$ et ce dans un intervalle de température assez étendu (verres dits athermiques). Pour les cristaux de grenat d'yttrium-aluminium les valeurs de W sont de deux à trois ordres plus élevées, mais cela est en partie compensé par leur plus grande conductibilité thermique.

Une importance exceptionnelle revient à la tenue des matériaux actifs des lasers aux rayonnements. Il est impossible d'élaborer des lasers fiables de grande puissance si l'on ne dispose pas de matériaux transparents pouvant supporter sans dommage des flux puissants de rayonnement laser. A la différence des lasers à gaz, en premier lieu des lasers à CO_2 où le point faible au point de vue du dommage causé par les rayonnements est représenté généralement par les fenêtres des cuves à gaz et les miroirs, dans le cas des lasers solides c'est la tenue aux rayonnements du matériau actif lui-même qui est déterminante.

Actuellement ce sont les verres à néodyme ne contenant pas d'inclusions métalliques (platine, fer, et autres impuretés d'origine technologique) qui présentent la meilleure résistance aux rayonnements. Dans le cas de fonctionnement en mode libre (durée des impulsions de 0,1 à 1 ms) le seuil de destruction est de 10^3 à 10^4 J/cm^2. Pour les impulsions émises en régime de commutation de Q (1 à 10 ns) la valeur de seuil de l'énergie d'émission détériorant les faces des tiges en verre de meilleure qualité atteint plusieurs centaines de joules par cm^2. Ce résultat correspond cependant au cas où l'émission est focalisée en un point. Si la région éclairée a une grande section ($\geqslant 1$ cm^2), le seuil de destruction diminue d'un ordre de grandeur et plus, en raison de la probabilité de tomber sur un défaut du matériau dont l'irradiation amorce une avalanche destructive. Lorsque la durée de l'impulsion est inférieure à 1 ns (fonctionnement en modes bloqués), les seuils de destruction représentent quelques joules par cm^2.

Dans les lasers déclenchés à commutation de Q les rubis et les grenats sont détruits lorsque l'énergie d'émission atteint 10 à 30 J/cm^2.

Les processus physiques déterminant les mécanismes de destruction des

solides cristallins et des verres par les émissions lasers sont très différents. L'étude de ces processus fait partie de l'étude générale des interactions des rayonnements lasers avec les substances qui font l'objet d'un cours spécial. On ne notera ici que le rôle de l'effet dit d'autofocalisation qui consiste en ce que le champ du rayonnement laser est tellement intense qu'il modifie l'indice de réfraction du matériau transparent au point qu'il s'y forme une espèce de lentille efficace qui accroît encore l'intensité du champ dans le matériau, ce qui renforce en retour la focalisation du rayonnement, sa concentration ultérieure et entraîne finalement la destruction du matériau.

On caractérise l'aptitude des matériaux à l'autofocalisation par un indice de réfraction non linéaire n_2. Compte tenu de l'influence du champ, l'indice de réfraction du milieu se laisse exprimer en première approximation par la formule

$$n = n_0 + n_2 E^2, \qquad (20.2)$$

où n_0 est la partie linéaire de l'indice de réfraction, qui est indépendante de l'amplitude du champ électrique E de l'onde laser.

Tout comme la constante thermo-optique W, l'indice de réfraction n_2 est une grandeur importante caractérisant les propriétés optiques de l'élément actif du laser solide. Pour les meilleurs verres de laser $n_2 \leqslant 10^{-13}$ CGSE et pour le rubis et le grenat n_2 est de 2 à 4 ordres de grandeur plus grand.

Soulignons une fois encore que la technologie de fabrication du verre optique de bonne qualité est bien développée. Il existe des verres à néodyme à base de silicate, de phosphate, de borate, de béryllate et de germanate. Le choix du verre dépend des conditions de fonctionnement du laser.

Vingt-et-unième leçon. RELAXATION NON RADIATIVE DANS LES SOLIDES

Interaction électron-phonon. Liaison vibronique faible. Probabilité de la relaxation multiphononique. Spectre de vibration de la matrice. Longueur d'onde maximale. Cas des ions néodyme et erbium. Interaction mutuelle des ions. Amortissement efficace dans un système d'oscillateurs faiblement couplés. Probabilité du transfert de l'energie du donneur à l'accepteur. Migration de l'énergie. Choix des concentrations optimales. La sensibilisation.

Dans ce qui précède nous avons maintes fois mentionné le rôle important que joue la relaxation non radiative dans la création de l'inversion de population dans les lasers et les masers. Le mécanisme et la manifestation de la relaxation non radiative varient selon l'intervalle spectral du milieu actif considéré. Un rôle important et bien souvent déterminant revient aux transitions non radiatives dans la formation d'une inversion de population dans le milieu actif des lasers solides (cf. leçon 19). C'est pour

cela que nous nous proposons d'examiner de plus près les processus de relaxation de l'energie d'excitation dans les milieux actifs des lasers solides, tout en restant dans le cadre du cours sur les fondements de l'électronique quantique*.

Les transitions non radiatives dans les solides, en entendant par solides les cristaux et les verres dopés par des impuretés et ayant des propriétés diélectriques, résultent de deux types d'interactions. Premièrement, c'est l'interaction électron-phonon qui détermine le transfert d'énergie entre les différents états d'une seule particule (d'un seul centre d'impureté), et deuxièmement, c'est l'interaction mutuelle des particules actives (dans notre cas interaction ion-ion) qui assure le transfert d'énergie entre les différents centres d'impureté.

Examinons d'abord l'interaction électron-phonon. La théorie générale de ces interactions est loin d'être parachevée. On ne peut arriver à des résultats quantitatifs que dans deux cas limites — le cas de la liaison vibronique faible (i.e. de la liaison des électrons avec les vibrations du réseau) et de la liaison vibronique forte. Le critère de la liaison faible est la petitesse de l'énergie du mouvement vibratoire de l'ion d'impureté devant l'énergie $\hbar\omega$ du quantum de vibration — le phonon. La liaison est dite forte si la première énergie n'est pas petite devant l'énergie du phonon. En notant M la masse réduite de l'ion, x le déplacement par rapport à sa position d'équilibre et ω la fréquence des vibrations, $Mx^2\omega^2$ représente une estimation de l'énergie des vibrations. Le rapport $Mx^2\omega^2/\hbar\omega$ est le paramètre sans dimension qui permet de définir les cas limites suivant que ce rapport est grand ou petit. Cependant il faut encore tenir compte du moment dipolaire de l'ion qui vibre ; puisque sa valeur est proportionnelle au déplacement x par rapport à sa position d'équilibre, on prend généralement la racine carrée du rapport défini ci-dessus et on écrit le critère de la liaison vibronique forte sous la forme

$$x\sqrt{M\omega/\hbar} \gg 1, \qquad (21.1)$$

tandis que l'inégalité opposée

$$x\sqrt{M\omega/\hbar} \ll 1 \qquad (21.2)$$

exprime le critère de la liaison vibronique faible.

En spectroscopie la liaison vibronique forte et la liaison faible se manifestent différemment. Dans le cas d'une liaison forte on observe un important déplacement de Stokes entre les spectres d'absorption et d'émission, ce déplacement étant presque inexistant dans le cas de la liaison faible. Dans

* Cette leçon a été rédigée en collaboration avec I. Chtcherbakov, à qui l'auteur est heureux d'exprimer sa gratitude.

le cas des ions trivalents des éléments des terres rares (TR^{3+}) qui nous concernent surtout, leurs propriétés optiques dépendent des électrons de la couche $4f$. Comme cette couche subit un effet d'écran dû aux électrons des couches supérieures, elle n'interagit que faiblement avec le champ cristallin de la matrice, et donc avec les vibrations de cette dernière. Les vibrations du réseau de la matrice n'exercent qu'une action faible sur les surfaces de potentiel des termes électroniques de la couche $4f$ de l'ion d'impureté. En conséquence, l'excitation de l'ion résultant de transitions entre les états électroniques de la couche $4f$ ne donne pas lieu à une excitation notable des vibrations du réseau. Dans le cas des ions Tr^{3+} l'énergie d'excitation de ces ions n'est pas utilisée pour faire vibrer le réseau et l'on n'observe pas de déplacement de Stokes entre les transitions électroniques dans le spectre d'absorption ($1 \to 2$) et le spectre de luminescence ($2 \to 1$). Cela implique que les transitions non radiatives entre les états électroniques des ions TR^{3+} doivent se laisser décrire dans l'approximation de la liaison vibronique faible. On se contentera donc de l'étude de cette dernière.

La méthode d'étude la plus générale est celle de la théorie quantique qui fait intervenir les ordres élevés de la théorie des perturbations. Dans le cas qui nous concerne, on devra l'appliquer aux interactions des ions TR^{3+} avec le réseau résultant de la modulation du champ cristallin statique par les vibrations du réseau. Comme la fente énergétique ΔE entre les états fondamental et excité d'un ion est grande devant l'énergie $\hbar\omega$ du phonon de la plus haute fréquence (cf. leçon 19), les transitions non radiatives considérées sont multiphononiques. Les différentes variantes de la théorie des perturbations conduisent à des expressions très compliquées de la probabilité de la relaxation non radiative donnant naissance à p phonons lors de la transition entre l'état initial supérieur et l'état final inférieur ; dans ces expressions figurent en effet les fonctions d'onde des états initial et final et de tous les états virtuels intermédiaires, les nombres de remplissage phononique et les densités des états phononiques.

Le plus souvent on ne dispose pas de données requises pour procéder à des calculs quantitatifs. Aussi utilise-t-on la théorie phénoménologique de la relaxation multiphononique qui se fonde sur les hypothèses suivantes :

a) la probabilité de la transition multiphononique est indépendante de la nature des états électroniques initial et final de centre d'impureté ;

b) la probabilité de la transition avec émission de p phonons est de beaucoup inférieure à celle qui correspond à l'émission de $p - 1$ phonons :

$$W^{(p)}/W^{(p-1)} = \varepsilon \ll 1 \; ; \tag{21.3}$$

c) la petite quantité ε est une caractéristique de la matrice (et non du centre d'impureté) et ne dépend pas de p ;

d) la transition non radiative donne naissance à des phonons de même

fréquence, de sorte que la loi de la conservation de l'énergie est de la forme

$$p\hbar\omega = \Delta E. \tag{21.4}$$

Sur la base de ces hypothèses on arrive à conclure qu'à la transition multiphononique participent les phonons ayant la plus grande énergie, i.e. la plus haute fréquence du spectre des vibrations de la matrice. Avec cette approche on arrive à établir une formule simple exprimant la dépendance de la probabilité d'une transition multiphononique avec la température T de la matrice et la fente énergétique ΔE dans le spectre de l'impureté active :

$$W(\Delta E,\ T) = W_E(p)\,W_T(p), \tag{21.5}$$

où

$$W_T(p) = (1 - e^{-\hbar\omega/kT})^{-p} \tag{21.6}$$

donne la variation de la vitesse des transitions non radiatives avec émission de p phonons en fonction de la température et

$$W_E(p) = C^{(p)}e^{\alpha\Delta E} \tag{21.7}$$

(qui au zéro absolu devient égal à $W(\Delta E,\ T)$) représente la variation de la probabilité cherchée en fonction de la largeur ΔE de la fente énergétique. Dans cette dernière formule $C^{(p)}$ et α sont des constantes phénoménologiques caractérisant la matrice dans laquelle est incorporée l'impureté. Généralement le modèle décrit de façon qualitativement correcte la situation réelle, mais il ne permet pas de déterminer le nombre ou l'énergie des phonons participant au processus de relaxation.

Examinons d'abord la formule (21.6) exprimant la variation de la relaxation en fonction de la température.

S'il existe un excedent d'énergie, la probabilité d'émission d'un phonon de fréquence ω est proportionnelle au nombre $n(\omega)$ de phonons déjà présents dans le mode phononique de fréquence ω (émission stimulée) plus un (émission spontanée) :

$$W \propto n(\omega) + 1.$$

L'occupation du mode phononique à la température T est donnée par la distribution de Bose-Einstein

$$n(\omega,\ T) = (e^{\hbar\omega/kT} - 1)^{-1}. \tag{21.8}$$

Comme le modèle considéré suppose que chaque acte de relaxation donne naissance à p phonons identiques, la probabilité du processus global est proportionnelle à $[n(\omega,\ T) + 1]^p$, d'où résulte la formule (21.6). On notera que pour $T \to 0$, $W_T(p) \to 1$ et $W(\Delta E,\ T) \to W_E(p)$.

Le point faible de ce modèle de relaxation multiphononique non radiative est l'hypothèse (21.4) que tous les phonons ont la même fréquence.

En fait les transitions à travers la fente énergétique ΔE impliquent des ensembles de phonons de fréquences différentes et de nombres p différents qui dépendent des conditions d'excitation des vibrations dans une matrice donnée. Ce qui compte ici c'est le spectre des vibrations possibles dont on peut se faire une idée par étude de l'effet Raman.

Suivant la nature du cristal ou du verre les spectres Raman ont des structures différentes et leurs spectres phononiques ont des étendues différentes. En règle générale, dans les cristaux la frontière des vibrations de haute fréquence se trouve plus bas que dans les verres. L'énergie des phonons ayant la fréquence la plus élevée est supérieure à l'énergie des phonons de Debye $\hbar\omega_D = kT_D$ (la température de Debye T_D des matériaux pour lasers se situe aux environs de 300 K).

Comme il n'existe aucune justification théorique des formules (21.5) à (21.7), c'est l'expérience qui joue le rôle principal. Les études expérimentales consistent généralement en des observations de la cinétique de la luminescence accompagnant l'excitation sélective d'un état donné de l'ion TR^{3+} incorporé dans une matrice dont le spectre phononique doit être connu. Comme le spectre des états des ions TR^{3+} ne varie que faiblement en fonction de la matrice dans laquelle on les incorpore, ce type d'expérience portant sur différentes matrices, où des ions différents se trouvent dans des états différents, permet de déterminer les paramètres de la dépendance du taux de relaxation du centre d'impureté en fonction de ΔE, $\hbar\omega$, kT.

On constate que, quoique différents phonons peuvent contribuer à la probabilité d'une transition non radiative, on observe pour différents ions incorporés dans différentes matrices un accord excellent entre le taux de relaxation et la position de la frontière des vibrations haute fréquence. Cet accord vaut non seulement pour la valeur absolue du taux de relaxation qui dépend du nombre p de phonons émis $p = \Delta E/\hbar\omega$ (où l'on doit entendre par ω la fréquence de la frontière des vibrations haute fréquence), mais aussi pour sa variation thermique qui dépend, elle, du rapport $\hbar\omega/kT$ et de la valeur de p.

Considérons maintenant la dépendance énergétique (21.7). Dans le type d'expériences dont il a été question plus haut, il a été prouvé que pour une large gamme de valeurs de la fente énergétique ΔE (depuis 1000 jusqu'à 5000 cm^{-1}) la variation du taux de la relaxation multiphononique en fonction de ΔE est effectivement exponentielle avec un degré de précision satisfaisant. La valeur absolue du taux de relaxation dépend de la matrice utilisée et ne dépend pas des états électroniques de l'ion Tr^{3+} entre lesquels on mesure ΔE. A titre d'exemple on a représenté sur la figure 21.1 la variation de la probabilité de la relaxation multiphononique des ions Nd^{3+}, Er^{3+} et Tm^{3+} incorporés dans des verres aux tellurites, aux germanates, aux silicates, aux phosphates et aux borates, en fonction de la largeur ΔE

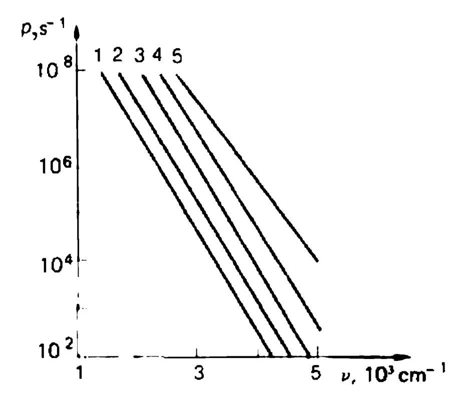


Fig. 21.1. Variation de la probabilité de la relaxation multiphononique des ions TR^{3+} en fonction de la fréquence pour les verres : *1* — aux tellurites, *2* — aux germanates, *3* — aux silicates, *4* — aux phosphates, *5* — aux borates.

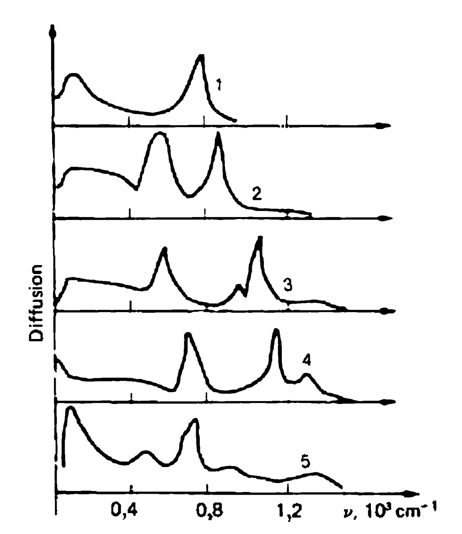


Fig. 21.2. Spectres Raman des verres: *1* — aux tellurites, *2* — aux germanates, *3* — aux silicates, *4* — aux phosphates, *5* — aux borates.

de la fente énergétique entre le niveau excité et le plus proche niveau de retombée. La figure 21.2 représente les spectres Raman caractérisant l'étendue du spectre phononique dans les mêmes verres. On décèle aisément les liens existant entre les graphiques 21.1 et 21.2. On voit que la valeur absolue de la relaxation multiphononique est la plus petite dans le verre aux tellurites dont le spectre de vibration est le plus étendu. L'existence d'un spectre phononique étendu témoigne d'un grand taux de relaxation multiphononique, ce qui, dans le cadre du modèle considéré, est lié à une diminution de la valeur de p.

Lorsque $\hbar\omega/kT > 1$, la partie $W_T(p)$ qui dépend de T ne dépend que faiblement de p. Une forte dépendance de p vérifiant l'hypothèse (21.3)

résulte de ce que la constante $C^{(p)}$ figurant dans (21.7) satisfait à l'inégalité $C^{(p)} \ll C^{(p-1)}$. Généralement $C^{(p)}/C^{(p-1)} = 0{,}01$ à 0,03, comme on peut le constater par dépouillement des courbes expérimentales analogues à celles représentées sur la figure 21.1.

En résumé on peut dire que les formules (21.5) à (21.7) reflètent correctement le caractère de la relaxation électron-phonon non radiative évoluant dans les centres d'impureté TR^{3+} dans les cristaux et dans les verres diélectriques.

Le mécanisme de la relaxation évoluant dans les centres d'impuretés, les formules (21.5) à (21.7) et les figures 21.1 et 21.2 permettent de formuler plusieurs conclusions importantes.

Considérons d'abord la question de la plus grande longueur d'onde pouvant être émise par un laser solide. Pour créer efficacement l'inversion de population requise il faut que le taux de relaxation non radiative du niveau laser supérieur ne soit pas supérieur au taux de son dépeuplement radiatif (voir leçon 19). On sait que la durée de vie caractéristique du niveau laser supérieur des ions Tr^{3+} est d'environ 1 ms. Il s'ensuit alors de la figure 21.1 qu'il est impossible de réaliser à l'aide des verres aux phosphates ou aux silicates un laser émettant sur une longueur d'onde supérieure à 2-2,5 μm, car pour une fente énergétique inférieure à 4000-5000 cm^{-1} le taux de relaxation non radiative dans ces matrices est déjà supérieur au taux de dépeuplement radiatif du niveau supérieur correspondant. Comme les matériaux cristallins présentent généralement des spectres phononiques moins étendus que ceux des verres, leur utilisation permet de produire des émissions de plus grandes longueurs d'onde. C'est le cas, par exemple, de l'émission dans la gamme de 3 μm fondée sur la transition ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ de l'ion Er^{3+}, incorporé dans différents matériaux cristallins (CaF_2, $LiYF_4$, $Y_3Al_5O_{12}$). Il est cependant peu probable qu'on puisse dépasser une longueur d'onde de 4 μm.

Analysons le système des niveaux énergétiques de l'ion néodyme (voir fig. 20.3) du point de vue du processus de relaxation multiphononique.

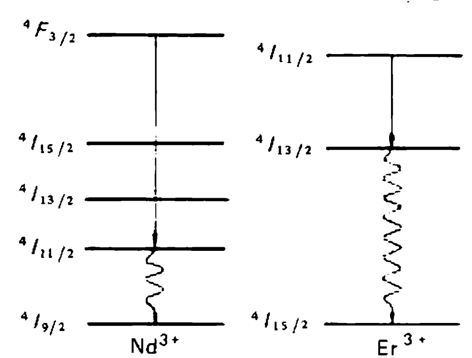


Fig. 21.3. Comparaison des systèmes des niveaux lasers des ions Nd^{3+} et Er^{3+}

Le niveau lasant supérieur ${}^4F_{3/2}$ de l'ion Nd^{3+} est séparé de l'état ${}^4I_{15/2}$ se trouvant juste au-dessous par une fente énergétique de 6000 cm^{-1}. Conformément aux données de la figure 21.1 pour l'état ${}^4F_{3/2}$ la durée de la relaxation multiphononique est notablement plus longue que sa durée de vie radiative. En conséquence, le rendement quantique en luminescence du niveau lasant supérieur (en l'absence de suppression par effet de concentration) est proche de 100 %.

Le niveau de retombée ${}^4I_{11/2}$ de l'ion néodyme se trouve à 2000 cm^{-1} au-dessus du niveau fondamental. Dans les verres aux phosphates et aux silicates une telle fente énergétique confère au niveau une durée de vie de l'ordre de 1 ns. Par conséquent, le régime d'autolimitation de l'émission (voir leçon 14) ne doit pas se manifester pour des impulsions d'une durée supérieure de 1 ns.

La fente énergétique entre le niveau supérieur ${}^4F_{3/2}$ du néodyme et les bandes fondamentales de pompage ne dépasse pas, elle aussi, 2000 cm^{-1}. En conséquence, le temps de relaxation non radiative des états appartenant à ces bandes à l'état métastable ${}^4F_{3/2}$ est compris entre 1 et 10 ns si la durée de vie propre de ce niveau est égale à 0,1—1 ms. Ainsi toute l'énergie d'excitation se trouve emmagasinée dans l'état métastable du néodyme.

Ces conclusions sont entièrement confirmées par l'expérience, ce qui justifie une large utilisation de l'ion Nd^{3+} en qualité de centre actif dans les matériaux cristallins et dans les verres pour lasers.

Examinons maintenant le laser fonctionnant sur la transition ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ de l'ion Er^{3+}, qui a déjà été mentionné dans ce qui précède. La figure 21.3 donne une représentation simplifiée du système des niveaux de cet ion, ainsi que celle des niveaux de l'ion néodyme. Le niveau de retombée ${}^4I_{13/2}$ n'est séparé que de 6000 cm^{-1} du niveau fondamental ${}^4I_{15/2}$, tandis que l'énergie correspondant à la transition laser ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ se trouve dans le domaine de 3500 cm^{-1}. Les nombres de phonons participant à la relaxation multiphononique non radiative sont différents pour les transitions ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ et ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$, en conséquence de quoi la durée de vie du niveau laser de départ ${}^4I_{11/2}$ est beaucoup plus petite que celle du niveau de retombée ${}^4I_{13/2}$; dans ces conditions le laser fonctionne dans le régime d'autolimitation, ce qui le distingue du laser au néodyme décrit plus haut. Pour le laser à erbium les bandes d'absorption pour l'éclairage de pompage se situent entre 15 000 et 25 000 cm^{-1}. Les transitions non radiatives à travers la fente énergétique s'étendant entre les bandes de pompage et le niveau laser de départ ${}^4I_{11/2}$, qui est assez large en comparaison avec le laser à néodyme, sont facilitées par la présence de nombreux niveaux d'énergie dans cette fente, qui est ainsi subdivisée en plusieurs fentes étroites où le processus de relaxation ne fait intervenir qu'un petit nombre de phonons.

16—7100

Ces exemples montrent comment se manifestent les processus de relaxation électron-phonon non radiative évoluant dans les ions TR^{3+} incorporés dans des cristaux et dans des verres diélectriques et comment ils se reflètent sur les caractéristiques correspondantes des milieux actifs pour lasers.

Considérons maintenant les interactions mutuelles des ions d'impuretés. Les processus d'échange d'énergie entre les centres d'impureté sont importants à plus d'un point de vue. Tout d'abord parce qu'une augmentation de la concentration des ions d'impureté, réalisée en vue d'augmenter le facteur d'amplification et le rendement énergétique par unité de masse du milieu actif, donne lieu à une intensification des processus d'échange d'énergie dans les différents mécanismes de relaxation d'énergie, qui dans ces conditions concernent les collectifs d'ions. En découle notamment la concentration limite des impuretés devant être incorporées dans les cristaux et dans les verres pour lasers. Deuxièmement, l'incorporation d'impuretés supplémentaires dans la matrice peut contribuer, lors des actes successifs de transport et de relaxation de l'énergie, à accélérer le transfert de l'énergie des bandes d'absorption à des états métastables des niveaux lasers supérieurs des impuretés actives et (ou) à accélérer le dépeuplement des niveaux lasers inférieurs. Troisièmement, la présence dans la matrice d'ions absorbants supplémentaires jouissant de la propriété de céder l'énergie reçue aux ions actifs permet d'accroître notablement le rendement énergétique des milieux actifs.

Dans le cas de transfert non radiatif de l'énergie du donneur (D) à l'accepteur (A), i.e. d'un processus tel que

$$D^* + A \to D + A^*, \tag{21.9}$$

lors duquel le donneur excité retourne à son état fondamental, tandis que l'accepteur initialement non excité passe à l'état excité à la suite d'une interaction dipolaire des particules D et A se trouvant à une distance R l'une de l'autre dans un milieu d'indice de réfraction n, la probabilité de ce processus se laisse calculer par la mécanique quantique en utilisant le premier ordre d'approximation de la théorie des perturbations. Notons que l'interprétation classique des phénomènes de transfert d'énergie conduisant à un résultat classique est également possible.

En reprenant une nouvelle fois la conception du dipôle électrique oscillant classique, considérons deux oscillateurs électroniques dipolaires en interaction mutuelle assurée par leurs champs électromagnétiques. Le système d'équations décrivant deux oscillateurs couplés est bien connu :

$$\begin{aligned} \ddot{x}_1 + 2\gamma_1\dot{x}_1 + \omega_{01}^2 x_1 &= \varkappa_{21}x_2, \\ \ddot{x}_2 + 2\gamma_2\dot{x}_2 + \omega_{02}^2 x_2 &= \varkappa_{12}x_1. \end{aligned} \tag{21.10}$$

Posons que le premier oscillateur représente la particule D et le second la particule A. Posons aussi que les fréquences ω_{01} et ω_{02} sont du même ordre de grandeur et que le couplage des oscillateurs est lâche ($\varkappa^2 = \varkappa_{12}\varkappa_{21} \ll \omega^4$). Le cas le plus intéressant est celui d'une relaxation rapide de l'état excité de la particule A. Cela implique que le transfert d'énergie en sens opposé $A \to D$ doit être exclu. Dans le modèle classique ce cas implique que le deuxième oscillateur est beaucoup plus fortement amorti ($\gamma_2 \gg \gamma_1$). Dans ces conditions la solution du système (21.10) montre que conformément aux fondements usuels de la théorie des vibrations, l'existence d'un couplage entre les oscillateurs accroît l'amortissement de l'oscillateur ayant le plus grand facteur de mérite.

Examinons le système (21.10) qui fait l'objet d'analyses détaillées en théorie des vibrations. La solution de ce système a été trouvée par V. Wien dès la fin du dix-neuvième siècle et a conduit à l'introduction de notions aussi importantes que les fréquences de vibration propres (ou normales), différentes des fréquences individuelles ω_{0i} dans les systèmes couplés possédant un grand nombre de degrés de liberté vibratoires. Les amplitudes relatives des vibrations du premier et du second oscillateur du système (21.10) ayant les fréquences propres ω_1 et ω_2, ainsi que les échanges d'énergie entre les oscillateurs dépendent non seulement de leur coefficient de couplage $\varkappa^2 = \varkappa_{12}\varkappa_{21}$, mais aussi du paramètre $\chi = 2\varkappa/(\omega_{01}^2 - \omega_{02}^2)$ et dépendent donc de la différence des fréquences individuelles. Ce paramètre a été introduit par L. Mandelstam lors de l'élaboration d'une théorie générale des vibrations.

Pour trouver la solution générale de (21.10) il faudrait résoudre une équation de quatrième ordre, ce qui ne permettrait pas de se faire une idée claire de la nature de cette solution. Mais dans l'approximation d'un couplage lâche et d'un χ petit, on résout facilement le système (21.10) à l'aide du schéma équivalent représenté sur la figure 21.4. Si les circuits oscillants sont parcourus par des courants harmoniques de fréquence ω et d'amplitudes I_1 et I_2 aux équations de Kirchhoff

$$
\begin{aligned}
I_1(R_1 + j\omega L_1 + 1/j\omega C_1) &= -j\omega M I_2,\\
I_2(R_2 + j\omega L_2 + 1/j\omega C_2) &= -j\omega M I_1
\end{aligned}
\tag{21.11}
$$

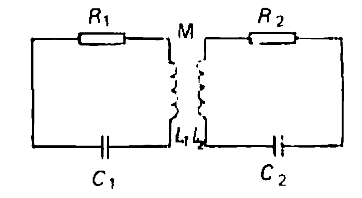


Fig. 21.4. Circuits oscillants à couplage inductif.

qui les décrivent correspondent les équations différentielles

$$q_1/C_1 + R_1\dot{q}_1 + L_1\ddot{q}_1 = -M\ddot{q}_2,$$
$$q_2/C_2 + R_2\dot{q}_2 + L_2\ddot{q}_2 = -M\ddot{q}_1, \tag{21.12}$$

où M est l'inductance mutuelle, q_1 et q_2 sont les charges accumulées sur les condensateurs C_1 et C_2, les autres notations étant indiquées sur la figure 21.4 (voir aussi les formules (6.48) à (6.56) et la figure 6.2).

On déduit facilement de (21.11) l'expression de la résistance pure efficace R_{eff} d'un certain circuit équivalent aux deux circuits RLC à couplage inductif :

$$R_{\text{eff}} = R_1 + R_2 \frac{\omega^2 M^2}{R_2^2 + (\omega L_2 - 1/\omega C_2)^2}. \tag{21.13}$$

En posant que χ est petit, ce qui revient à admettre que le premier oscillateur ne possède qu'une seule vibration harmonique, on définit un amortissement efficace du premier circuit couplé au second circuit par la relation $2\gamma_{\text{eff}} = R_{\text{eff}}/L_1$, par analogie avec les coefficients d'amortissement partiels $2\gamma_1 = R_1/L_1$ et $2\gamma_2 = R_2/L_2$ des circuits correspondants :

$$\gamma_{\text{eff}} = \gamma_1 + \gamma_2 \frac{\omega^2 M^2/L_1 L_2}{4\gamma_2^2 + (\omega^2 - \omega_{02}^2)^2/\omega^2}. \tag{21.14}$$

Sur le schéma de la figure 21.4 les coefficients de couplage du second circuit avec le premier et du premier avec le second sont donnés par $\mu_{21} = M/L_1$ et $\mu_{12} = M/L_2$. Les équations (21.10) et (21.12) diffèrent l'une de l'autre par la nature de couplage d'après la coordonnée et sa dérivée seconde respectivement. Ces couplages sont équivalents lorsque $\varkappa_{ik}x_i = \varkappa_{ik}q_i = -\mu_{ik}\ddot{q}_i$. Pour une vibration harmonique $q_i = q_{0i}\exp j\omega t$; la condition d'équivalence est donc $\varkappa_{ik} = \omega^2\mu_{ik}$, d'où $M^2/L_1L_2 = \varkappa^2/\omega^4$. Comme ω est proche de ω_{01}, et en posant que la différence $\omega_{01} - \omega_{02}$ est petite, on tire de (21.14), après y avoir remplacé $\omega^2 - \omega_{02}^2 \approx \omega_{01}^2 - \omega_{02}^2 \approx 2\omega(\omega_{01} - \omega_{02})$, l'expression

$$\gamma_{\text{eff}} = \gamma_1 + \frac{\varkappa^2}{4\omega^2\gamma_2} \frac{1}{1 + [(\omega_{01} - \omega_{02})/\gamma_2]^2}. \tag{21.15}$$

Considérons maintenant le coefficient de couplage $\varkappa^2$. A l'aide de la figure 21.5 on détermine aisément l'énergie de l'interaction électrostatique de deux

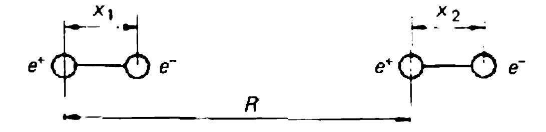


Fig. 21.5. Figure illustrant la définition de la force d'interaction électrostatique s'exerçant entre deux dipôles.

dipôles se trouvant à une distance R l'un de l'autre. Les moments dipolaires des dipôles 1 et 2 sont respectivement égaux à $p_1 = f_1 e x_1$ et $p_2 = f_2 e x_2$, où les facteurs sans dimension f_1 et f_2, appelés forces d'oscillateur, caractérisent la polarisabilité des oscillateurs formés par l'électron optique (charge $-e$) et le résidu ionique (charge $+e$) situés respectivement aux distances x_1 et x_2. Dans un milieu de permittivité ε l'énergie d'interaction mutuelle des dipôles est

$$U_{12} = \frac{\sqrt{f_1 f_2}}{\varepsilon}\left(-\frac{e^2}{R - x_1} - \frac{e^2}{R + x_2} + \frac{e^2}{R + x_2 - x_1} + \frac{e^2}{R}\right), \quad (21.16)$$

ce qui pour $R \gg x_1, x_2$, au terme de l'ordre de $(x_{1,2}/R)^2$ près, donne

$$U_{12} = -\frac{2e^2}{R^3} x_1 x_2 \frac{\sqrt{f_1 f_2}}{\varepsilon}. \quad (21.17)$$

Il s'ensuit que la force qu'exerce le deuxième oscillateur sur le premier est égale à

$$F_{21} = -\frac{\partial U_{12}}{\partial x_1} = \frac{2e^2}{R^3}\frac{\sqrt{f_1 f_2}}{\varepsilon} x_2,$$

et celle qu'exerce le premier oscillateur sur le second est

$$F_{12} = \frac{2e^2}{R^3}\frac{\sqrt{f_1 f_2}}{\varepsilon} x_1.$$

Comme dans le second membre des équations de l'oscillateur écrites sous la forme (21.10) doivent figurer les forces excitatrices F_{12}/m et F_{21}/m (m étant la masse de l'électron), il est évident que

$$\varkappa^2 = \varkappa_{12}\varkappa_{21} = \frac{4e^4}{m^2 R^6}\frac{f_1 f_2}{\varepsilon^2}. \quad (21.18)$$

On notera que pour les dipôles oscillants les calculs ci-dessus sont valables dans la région de rayonnement proche (pour $R < \lambda$, où λ est la longueur d'onde de l'émission de fréquence ω dans le milieu considéré).

En théorie classique de la dispersion on entend par force f de l'oscillateur la part d'oscillateurs élémentaires participant à la polarisation macroscopique du milieu à la fréquence ω. En théorie quantique on définit la force d'oscillateur non pas comme le nombre d'électrons d'une certaine sorte, mais comme le nombre d'oscillateurs virtuels appartenant à l'électron et caractérisant son aptitude à constituer un dipôle électron optique-résidu ionique à la fréquence considérée. La mécanique quantique permet de calculer la force d'oscillateur d'un système électronique donné ; on trouve qu'elle est égale à

$$f_k = \frac{3mc^2}{2e^2\omega^2} A_k, \quad (21.19)$$

où A_k est le coefficient d'Einstein pour la transition spontanée à la fréquence ω. Dans le cas qui nous concerne ($n^2 = \varepsilon$)

$$\varkappa^2 = \frac{9c^2}{n^4\omega^4R^6} A_1A_2, \tag{21.20}$$

et on obtient

$$\gamma_{\text{eff}} = \gamma_1 + \gamma_{12}, \tag{21.21}$$

où

$$\gamma_{12} = \frac{9}{4} \frac{c^6}{n^4\omega^6R^6} A_1A_2 \frac{1/\gamma_2}{1 + [(\omega_{01} - \omega_{02})/\gamma_2]^2} .$$

La quantité 2γ figurant dans les équations (21.10) est homogène à un taux de relaxation de l'intensité des vibrations de l'oscillateur. Par conséquent, la quantité $2\gamma_{12}$, qui caractérise l'accroissement additif du taux de relaxation d'un oscillateur aux dépens des pertes d'énergie dans le second oscillateur couplé au premier, est homogène à la probabilité de transfert d'énergie du donneur à l'accepteur :

$$W_{DA}^0 = 2\gamma_{12}. \tag{21.22}$$

La formule (21.22) a été établie pour des oscillateurs ayant des fréquences ω_{01} et ω_{02} constantes. Or dans les limites des raies spectrales du donneur et de l'accepteur on trouve un grand nombre de fréquences. Il est donc permis de poser que les facteurs de forme $q_D(\omega)$ et $q_A(\omega)$ des raies donnent la distribution en fréquence des oscillateurs ou, ce qui revient au même, la probabilité de trouver un oscillateur D ou A à une certaine fréquence. La probabilité de trouver simultanément un donneur à la fréquence ω_{01} et un accepteur à la fréquence $\omega_{01} + \Delta$ est donnée par le produit $q_D(\omega_{01})q_A(\omega_{01} + \Delta)$. La probabilité d'échange d'énergie entre D et A est égale à $q_D(\omega_{01})q_A(\omega_{01} + \Delta) W_{DA}(\Delta)$ et dépend aussi bien des fréquences partielles du donneur et de l'accepteur que du désaccord de ces fréquences. Il s'ensuit que la probabilité totale du transfert d'énergie dans le processus $D^* \to A$ est donnée par l'intégrale étendue à toutes les fréquences ω_{01} et à toutes les valeurs du désaccord $\Delta = \omega_{02} - \omega_{01}$:

$$W_{DA} = \int_0^\infty d\omega_{01} \int_{-\infty}^\infty q_D(\omega_{01})q_A(\omega_{01} + \Delta) W_{DA}^{(0)}(\Delta)d\Delta. \tag{21.23}$$

Comme la courbe de résonance de la raie d'absorption (d'émission) de l'accepteur est notablement plus large que le facteur de résonance $(1 + \Delta^2/\gamma^2)^{-1}$ figurant dans $W_{DA}^{(0)}$, on peut poser que tous les écarts de fréquence satisfont à

$$q_A(\omega_{01} + \Delta) \approx q_A(\omega_{01}) + \Delta dq_A/d\omega \approx q_A(\omega_{01}).$$

Dans ces conditions le produit $q_D(\omega_{01})q_A(\omega_{01})$ ne participe pas à l'intégration sur Δ, ce qui permet, à l'aide de l'égalité

$$\int_{-\infty}^{\infty} [1 + x^2/a^2]^{-1} dx = \pi a,$$

d'arriver à l'expression finale

$$W_{DA} = 3\pi \frac{c^6}{n^4\omega^6 R^6} A_1 A_2 \int_0^{\infty} q_D(\omega) q_A(\omega) d\omega, \qquad (21.24)$$

où il a été tenu compte de la nécessité de faire la moyenne sur les orientations des dipôles, ce qui s'est traduit par le facteur 2/3, ainsi que de ce que la dépendance du produit $q_D(\omega)q_A(\omega)$ avec la fréquence présente une allure de résonance, ce qui a permis de faire sortir ω^{-6} de sous le signe d'intégration. On notera que l'expression

$$\int_0^{\infty} q_A(\omega) q_D(\omega) d\omega$$

est appelée intégrale de chevauchement.

Il a été déjà signalé que la formule (21.24) peut être établie dans le cadre du premier ordre d'approximation de la théorie des perturbations. Le fait que la constante de Planck $\hbar$ ne figure pas dans l'expression déduite de la théorie quantique permet d'établir et d'analyser cette formule selon une approche classique. Il convient de remarquer cependant que l'écriture de W_{DA} sous la forme (21.24) permet de généraliser les résultats obtenus dans l'approximation dipolaire aux cas multipolaires dont on tient compte à l'aide des coefficients d'Einstein A_1 et A_2. Toutes les quantités figurant dans (21.24) se laissent déterminer expérimentalement. Comme $c/n\omega = \lambda/2\pi$ (λ est la longueur d'onde dans le milieu d'indice de réfraction n) et comme le coefficient d'Einstein A détermine la section d'absorption à la résonance $\sigma = A\lambda^2/4\pi^2\Delta\nu$ (cf. (3.19)), on peut mettre (21.24) sous une forme différente :

$$W_{DA} = 3n^2\lambda^2\sigma_D\sigma_A R^{-6}\Delta\nu_D\Delta\nu_A \int_0^{\infty} q_D(\omega) q_A(\omega) d\omega, \qquad (21.25)$$

où $\Delta\nu_D$ et $\Delta\nu_A$ sont respectivement les largeurs des raies d'absorption à la résonance du donneur et de l'accepteur.

Ainsi, la vitesse de transfert de l'énergie du donneur à l'accepteur est déterminée par le chevauchement des spectres de ces particules ainsi que par les éléments de matrice des opérateurs des transitions de résonance. Les coefficients d'Einstein caractérisent l'aptitude du donneur et celle de l'accepteur à entrer en interaction mutuelle, tandis que le chevauchement des spectres rend possible cette interaction. Le caractère électrostatique de

l'interaction des dipôles oscillants se manifeste dans la région de rayonnement proche par une forte dépendance (de la forme R^{-6}) de la vitesse de transfert de l'énergie avec la distance entre les dipôles. Afin de séparer la dépendance spatiale de celle déterminée par les propriétés des particules interagissantes, on utilise la constante C_{DA} de la vitesse de transfert de l'énergie définie par la relation

$$W_{DA} = C_{DA}/R^6. \tag{21.26}$$

Il convient de remarquer que la formule (21.24) décrit l'interaction du couple donneur-accepteur se trouvant l'un de l'autre à une distance R donnée. En réalité il ne peut être réellement question de distances égales et fixées entre les particules en interaction mutuelle. La distribution des impuretés dans les cristaux, surtout pour les petites concentrations, est aléatoire et les impuretés se trouvent à différentes distances les unes des autres. Ainsi, pour assurer la description macroscopique du transfert d'énergie suivant le canal $D^* \to A$, il faut prendre la moyenne sur la distribution $W_{DA} - \varphi(W_{DA})$ correspondant à la distribution des distances $\psi(R)$ entre donneurs et accepteurs, que l'on calcule d'après les règles connues de la théorie des probabilités. Notons que la distance moyenne entre les accepteurs est égale à $\langle R \rangle = N_A^{-1/3}$, où N_A est la concentration des accepteurs.

Il s'ensuit que la désactivation des donneurs en fonction du temps est proportionnelle à

$$\int_0^\infty \varphi(W_{DA}) \exp(-W_{DA}t) dW_{DA}.$$

Pour une distribution gaussienne des accepteurs on arrive à une dépendance de la forme

$$N_D(t) \propto \exp(-\gamma/\sqrt{t}), \tag{21.27}$$

où $\gamma = (4/3)\pi^{3/2}C_{DA}^{1/2}N_A$. Dans ces conditions la variation temporelle de l'intensité de luminescence des donneurs est de la forme

$$I(t) = I_0 \exp[-(t/\tau_0 + \gamma\sqrt{t})], \tag{21.28}$$

où τ_0 est la durée de vie propre des donneurs. L'expression (21.27) a une signification physique simple. L'excitation de chacun des donneurs disparaît suivant la loi exponentielle $\exp(-W_{DA}t)$, mais W_{DA} est différent pour les différents couples $D \to A$ en raison de la fluctuation de la distance R ; or la somme des termes exponentiels n'est pas une exponentielle.

Dans les cristaux réels, outre le transfert d'énergie des donneurs aux accepteurs (interaction $D^* \to A$), un rôle notable peut revenir à la migration de l'énergie d'excitation dans le sous-système des donneurs (interaction $D^* \to D$). Comme l'acte élémentaire de l'interaction $D^* \to D$ est de même nature que dans le cas de l'interaction $D^* \to A$, la probabilité de ce proces-

sus de transfert d'énergie peut être caractérisée par la quantité C_{DD} introduite de façon analogue à (21.26) par la relation

$$W_{DD} = C_{DD}/R^6, \tag{21.29}$$

et définie par les formules (21.24) ou (21.25) où l'on doit remplacer l'indice A par l'indice D.

L'interaction $D^* \to D$ ne fait pas varier la population de l'état excité du sous-système de donneurs. Mais les migrations spatiales de l'excitation font varier les distances effectives de l'interaction du sous-système de donneurs tout entier avec le sous-système d'accepteurs. En conséquence, la migration de l'excitation dans le sous-système de donneurs affecte le taux de désexcitation. En première approximation l'influence de cet effet peut être prise en compte en introduisant dans l'exposant de la désexcitation exponentielle un terme supplémentaire proportionnel à la vitesse de migration W_m. Dans ces conditions la variation temporelle de l'intensité de luminescence sera décrite non par (21.28) mais par l'expression

$$I(t) = I_0 \exp[-(t/\tau_0 + \gamma\sqrt{t} + W_m t)], \tag{21.30}$$

où $W_m = W_m(C_{DD}, C_{DA}, N_D, N_A)$, N_D étant la concentration des donneurs. La forme de la fonction $W_m(C_{DD}, \ldots)$ dépend des processus de migration et nous n'insisterons pas ici sur cette question. Il suffit de noter que W_m croît avec C_{DD}, C_{DA}, N_D, N_A.

Ainsi les quantités C_{DD}, C_{DA}, les concentrations N_D des donneurs et N_A des accepteurs déterminent la vitesse de disparition de l'énergie d'excitation au sein du collectif de centres d'impuretés en interactions mutuelles. Ces considérations permettent de donner des réponses aux questions qui ont été posées au début de la discussion des interactions ion-ion et de déterminer les concentrations optimales des centres donneurs et accepteurs.

Si l'on considère, par exemple, un laser fonctionnant en régime continu, il est nécessaire d'assurer un rendement en luminescence proche de 100 % afin d'éviter la surchauffe du milieu actif. Cela signifie que dans l'exponentielle de l'expression (21.30) c'est le premier terme qui doit prédominer :

$$1/\tau_0 \gg \gamma/\sqrt{t} + W_m. \tag{21.31}$$

Connaissant les dépendances $\gamma = \gamma(C_{DA}, N_A)$ et $W_m = W_m(C_{DD}, \ldots)$, on arrive à déterminer les concentrations optimales des centres d'impuretés pour lesquelles la condition (21.31) sera vérifiée. Il est évident qu'il serait irrationnel de satisfaire à cette condition en diminuant N_D, puisque le rendement énergétique massique en sera diminué. Notons qu'une diminution de C_{DD} et C_{DA}, qui serait bénéfique, peut être réalisée par un choix d'une matrice, où les intégrales de chevauchement et les forces d'oscillateurs correspondantes sont petites. C'est en se fondant sur ce raisonnement qu'on

a élaboré de nombreux milieux actifs, tel le pentaphosphate de néodyme (NdP_5O_{14}), dans lesquels la concentration des ions néodyme a été portée à une valeur supérieure à 10^{21} cm^{-3}, concentration qui est d'un ordre de grandeur plus grande que celle qui existe dans les cristaux et verres pour lasers généralement utilisés.

En régime d'impulsions les conditions auxquelles doit satisfaire le milieu actif sont différentes. Dans ce cas toute l'énergie d'excitation doit être emmagasinée sur le niveau laser supérieur du sous-système donneur pendant que dure l'impulsion d'excitation. Il s'ensuit que la durée de vie efficace concernant le processus de dépeuplement (21.30) doit être supérieure à la durée de l'impulsion de pompage τ_p. A la place de (21.31) on doit avoir la condition

$$1/\tau_p > 1/\tau_0 + \gamma/\sqrt{\tau_p} + W_m. \tag{21.32}$$

A titre d'exemple on peut citer le verre aux phosphates contenant du lithium, du lanthane et du néodyme, où la concentration de ce dernier élément est notablement plus grande que dans les verres pour lasers usuels. Pour que la condition (21.32) soit satisfaite, il faut choisir convenablement la composition du verre.

Reprenons la discussion des propriétés du laser à erbium émettant sur 3 μm. Lors de l'analyse de la relaxation électron-phonon, on a indiqué que la durée de vie du niveau laser de retombée $^4I_{13/2}$ est notablement plus longue que celle du niveau laser de départ $^4I_{11/2}$, ce qui impose un régime d'autolimitation de l'émission. L'incorporation d'accepteurs convenablement choisis, tels que les ions de holmium et de thulium qui possèdent des états qui sont en résonance par rapport au niveau $^4I_{13/2}$ de l'erbium, permet de réduire notablement la durée de vie de ce dernier niveau. Si l'on arrive à inverser simultanément l'inégalité (21.31) pour le niveau $^4I_{13/2}$ par rapport à la durée de vie propre du niveau $^4I_{11/2}$, i.e. si l'on a

$$(\gamma/\sqrt{t} + W_m)_{^4I_{13/2}} \gg (1/\tau_0)_{^4I_{11/2}}, \tag{21.33}$$

l'autolimitation de l'émission est levée.

L'effet du transfert d'énergie peut être mis à profit pour accroître la population du niveau laser supérieur. Il s'agit du phénomène bien connu de la sensibilisation de la luminescence qui consiste en ce que la lumière excitatrice est absorbée par une sorte de particules (donneurs), tandis que les particules d'une sorte différente (accepteurs) émettent de la lumière. Bien entendu, dans ce cas ce sont les accepteurs qui sont les centres d'impureté qui assurent l'émission laser. Le taux de peuplement par sensibilisation dépend des quantités γ et W_m. Comme dans la représentation des niveaux du système avec sensibilisation, les rôles respectifs du donneur et de l'accepteur sont intervertis en ce qui concerne l'émission laser, la condition d'une

émission continue s'exprime par l'inégalité (21.31), mais inversée. Comme en régime d'impulsions l'accepteur doit emmagasiner de l'énergie, il faut que la vitesse de transfert de l'énergie soit supérieure non seulement à la vitesse de dépeuplement des niveaux donneurs $1/\tau_D$ mais également à la vitesse de dépeuplement du niveau accepteur $1/\tau_A$. Si ces conditions sont satisfaites, l'accroissement de la population du niveau laser supérieur est donné par

$$Q = N_D \int\limits_{\Delta\nu_D} \frac{I(\nu)}{h\nu}\, \sigma_D(\nu)d\nu \left\{ N_A \int\limits_{\Delta\nu_A} \frac{I(\nu)}{h\nu}\, \sigma_A(\nu)d\nu \right\}^{-1}, \qquad (21.34)$$

où $I(\nu)$ est le spectre du rayonnement de pompage, $\sigma_D(\nu)$ et $\sigma_A(\nu)$ sont respectivement les sections d'absorption dans les bandes de pompage des donneurs et des accepteurs ; l'intégration est étendue aux régions de pompage $\Delta\nu_D$ et $\Delta\nu_A$. Ce procédé de mise en œuvre du transfert d'énergie offre de grandes potentialités pour le développement de l'électronique quantique du solide.

Les considérations qui ont été exposées dans cette leçon montrent le rôle important qui revient aux processus de relaxation non radiative et de transfert de l'énergie d'excitation dans les milieux actifs des lasers solides.

Notons pour conclure l'analogie profonde qui existe entre les processus de relaxation dans les systèmes de centres d'impureté incorporés dans les solides (interactions électron-phonon et dipôle-dipôle) et la relaxation par chocs dans les gaz (relaxations $V - T$, $R - T$, $V - V$).

Vingt-deuxième leçon. LASERS À COLORANTS

Propriétés spectrales et luminescentes des colorants. Représentation des niveaux d'énergie. Cycle de pompage optique. Accord de la fréquence d'émission. Processus parasites. Facteur d'amplification. Régimes continu et d'impulsions. Seuil de pompage. Pompage par lampes et par lasers, régime d'émission continue.

Parmi les lasers solides, les lasers à colorants occupent une place à part (il serait plus exact de dire lasers à solutions de molécules de colorants organiques dans des solvants organiques ou dans l'eau). Ces lasers sont connus depuis 1966. Ces lasers qui peuvent assurer une émission depuis le plus proche infrarouge jusqu'au proche ultraviolet jouissent d'une propriété tout à fait remarquable — celle d'admettre un accord continu de la longueur d'onde d'émission dans une gamme de plusieurs dizaines de nanomètres avec un degré de monochromaticité atteignant 1 à 1,5 MHz. Les lasers à colorants fonctionnent en régimes continu, d'impulsions et d'impulsions à répétition périodique. L'énergie des impulsions émises atteint des centaines de joules, la puissance d'émission en régime continu atteint plusieurs

dizaines de watts, la fréquence de répétition des impulsions est de plusieurs centaines d'hertz et le rendement est de plusieurs dizaines de pour cent (dans le cas du pompage par laser). En régime d'impulsions la durée de l'émission dépend de la durée des impulsions de pompage. Dans le régime en mode bloqué, on arrive à produire des impulsions d'une durée mesurée en picosecondes et en subpicosecondes.

Ces données concernent des lasers différents, se distinguant les uns des autres par la construction du résonateur, la source de pompage, la substance active, etc. Mais pour n'importe quel laser à colorant l'accord continu de la longueur d'onde d'émission et ses différentes autres caractéristiques lasers en font des générateurs de rayonnement monochromatique uniques en leur genre.

Les propriétés des lasers à colorants sont liées aux propriétés de leurs milieux actifs — les colorants organiques. Par tradition on appelle colorants les composés organiques présentant une vive coloration, i.e. une intense absorption large bande dans la région visible du spectre, qui peut être fixée à une matière pour la teindre. Actuellement on appelle colorants les composés organiques compliqués possédant tout un système de liaisons chimiques conjuguées et présentant d'intenses bandes d'absorption dans la région visible ou dans le proche ultraviolet. Dans cette définition ne figurent plus ni la coloration ni l'aptitude à communiquer une coloration à d'autres matières, de sorte que le terme colorant désigne des composés organiques ayant une certaine composition chimique et présentant des propriétés spectrales luminescentes. Les composés organiques colorés contiennent des groupements chromophores tels que $—NO_2$, $—N=N—$, $=CO$ qui sont responsables de la coloration des composés. La présence de groupements auxochromes tels que $—NH_2$, $—OH$ confère au composé des propriétés de colorant dans le sens usuel du terme.

Ce qui nous importe est que les colorants peuvent absorber et émettre des rayonnements dans toute la partie du spectre comprise entre l'ultraviolet proche et le proche infrarouge. Parmi les milliers de colorants actuellement connus, un petit nombre seulement sont fluorescents en solution. Deux à trois centaines de colorants sont susceptibles d'émission laser. Leurs propriétés spectrales et luminescentes dépendent de la structure du colorant, ainsi que du caractère de son interaction avec le solvant. Quoique les différents colorants ou un même colorant dissous dans des solvants différents soient caractérisés par des spectres se distinguant par les longueurs d'onde, la largeur, la structure et l'intensité, on peut dégager des propriétés communes dont l'existence établit des similitudes entre différents colorants pour laser.

Premièrement, la largeur des bandes d'absorption et d'émission est de $1000\ cm^{-1}$ environ. Dans la partie du spectre située du côté des ondes cour-

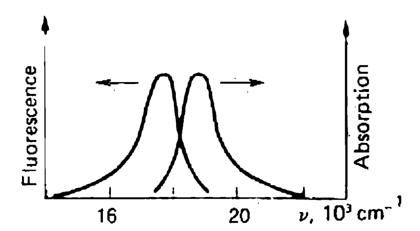


Fig. 22.1. Spectres d'absorption et de fluorescence du colorant rhodamine 6G en solution alcoolique.

tes par rapport à la bande d'absorption principale, on peut trouver une ou plusieurs bandes d'absorption supplémentaires. Deuxièmement, le maximum de fluorescence se situe dans la partie du spectre située du côté des grandes longueurs d'onde par rapport au maximum d'absorption principal (décalage de Stokes du pic de fluorescence). Ce décalage et la largeur des spectres de fluorescence et d'absorption peuvent être tels que le bord côté ondes courtes du spectre de fluorescence chevauche le bord côté ondes longues du spectre d'absorption (fig. 22.1). Troisièmement, le spectre de fluorescence se présente généralement comme la réflexion dans un miroir du spectre d'absorption et la durée de la fluorescence est de l'ordre de 1 ns. On peut observer aussi, et on en observe, des spectres d'absorption induits par la présence d'états excités (transitions entre états excités), ainsi que de nouvelles bandes d'absorption d'origine photochimique.

A la différence des lasers à gaz atomiques et à molécules gazeuses de petites dimensions, ainsi que des lasers solides dopés par des ions d'impuretés, il est impossible de donner une représentation exacte des niveaux d'énergie des molécules de colorants organiques pour laser (masse moléculaire comprise entre 200 et 600, chaque molécule contenant de 20 à 60 atomes). On ne connaît pas les fonctions d'onde des différentes configurations de molécules composées d'un grand nombre d'atomes et possédant une multitude de combinaisons d'états permis électroniques, vibratoires et rotatoires. Le nombre de degrés de liberté vibrationnels de ces molécules (voir leçon 15) est généralement supérieur à 10^2. En conséquence, les puits de potentiel des termes électroniques, les niveaux d'énergie vibratoires et rotatoires de ces molécules ne se laisseraient présenter que dans un espace multidimensionnel, chose qui même si elle était réalisable, ne permettrait pas de les visualiser. La configuration, et donc l'énergie potentielle d'un état électrono-vibro-rotatoire d'une molécule de colorant, est une fonction de plusieurs coordonnées. On peut cependant en donner une description schématique en utilisant un espace conventionnel, où l'ensemble des coordonnées de configuration est remplacé par une coordonnée conventionnelle.

La figure 22.2 donne la représentation ainsi conçue des niveaux d'énergie d'une molécule de colorant organique. Les états de vibration-rotation représentés sur cette figure sont groupés autour des états électroniques dis-

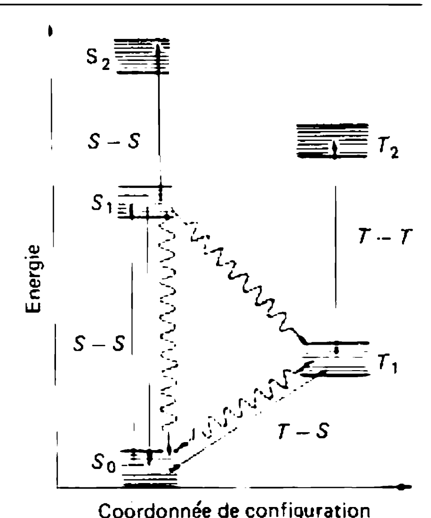


Fig. 22.2. Représentation des niveaux d'énergie d'un colorant : les lignes ondulées symbolisent les processus de conversion non radiative et les lignes droites les transitions radiatives.

tants de (1 à 2)·10^4 cm^{-1}. La distance entre les états vibratoires est de l'ordre de 10^3 cm^{-1} environ et celle entre les états rotatoires de 1 à 10 cm^{-1}. Les états électroniques sont divisés suivant le spin de l'électron en états singulets (S) et triplets (T). En fait, en raison de la liaison spin-orbite il se produit un mélange d'états singulets et triplets purs. Pour mieux montrer le caractère conventionnel de cette représentation on notera que les coordonnées qui correspondent aux différents minimums d'énergie diffèrent suivant l'état électronique considéré.

A la température ordinaire et dans les conditions d'équilibre les niveaux de vibration-rotation inférieurs ($E \leqslant$ 200 à 250 cm^{-1}) de l'état fondamental S_0 sont occupés. Sous l'action d'une excitation optique à l'aide d'un rayonnement monochromatique au cours de la transition $S_0 \to S_1$, en vertu du principe de Franck-Condon, un état de vibration-rotation déterminé du terme S_1 sera peuplé. Une thermalisation rapide de l'énergie excédentaire se produit dans l'état S_1 (temps de relaxation 1 à 10 ps). Comme la durée de vie radiative des états excités du terme S_1 est généralement égale à 1-5 ns, la relaxation non radiative dans l'état S_1 évolue plus rapidement que la relaxation radiative de l'état S_1 dans la transition $S_1 \to S_0$.

Dans le cas de configurations d'équilibre décalées (voir leçon 18), en vertu du principe de Franck-Condon, ce sont les niveaux vibratoires supérieurs de l'état S_1 qui sont excités. Lors de la relaxation non radiative l'énergie d'excitation est, pour l'essentiel, transférée aux niveaux vibratoires inférieurs de cet état. La molécule, dont les niveaux inférieurs de l'état S_1 sont occupés, peut retourner à l'état S_0 en émettant un photon. Cette relaxation radiative porte le nom de fluorescence. Conformément aux considéra-

tions exposées ci-dessus, l'énergie du photon émis est inférieure à l'énergie du photon absorbé ; c'est ce qui explique le décalage de Stokes dans le spectre de fluorescence par rapport au spectre d'absorption. L'émission des photons de fluorescence se conforme aussi au principe de Franck-Condon (voir fig. 22.2). L'énergie excédentaire $h\nu_{pomp} - h\nu_{ém}$ libérée au cours du processus de relaxation vibratoire non radiative échauffe les molécules du colorant et le solvant.

Un temps de relaxation égal à 1-10 ps est caractéristique de la relaxation de l'énergie vibratoire dans un liquide qui est un milieu condensé. Le fait que le décalage de Stokes qu'on observe dans le spectre de fluorescence des molécules à l'état de vapeur est le même que dans le cas des solutions liquides signifie qu'il existe un mécanisme intramoléculaire de redistribution de l'excédent d'énergie vibratoire. Dans les molécules aussi compliquées que celles qu'on considère ici, la thermalisation de l'énergie vibratoire peut faire intervenir des interactions anharmoniques à l'intérieur et entre les modes vibratoires de la molécule.

Le mécanisme de la relaxation vibrationnelle dans les limites du terme S_1 nous importe peu pour l'instant. Ce qui compte c'est le résultat selon lequel les niveaux de départ pour la transition $S_1 \to S_0$ avec émission de fluorescence sont les niveaux vibratoires inférieurs de l'état S_1. Il est tout aussi important de déterminer le niveau de retombée de la transition $S_1 \to S_0$. On a déjà indiqué plus d'une fois que dans le cas où les configurations d'équilibre des termes électroniques S_1 et S_0 sont différentes, en vertu du principe de Franck-Condon les niveaux de retombée des transitions $S_1 \to S_0$ sont les niveaux supérieurs de l'état fondamental S_0. Comme ces niveaux ne sont pas occupés par voie thermique, le cycle de pompage optique inclut, à côté de l'absorption *S-S* et de la fluorescence *S-S*, des transitions de relaxation non radiatives dans les états S_1 et S_0 et fait intervenir quatre niveaux d'énergie, comme dans le cas des lasers solides. Or nous savons déjà que cet état de choses favorise l'inversion.

Les considérations ci-dessus ont été développées pour le cas du pompage de la transition $S_0 \to S_1$ par un rayonnement monochromatique. En se référant à la figure 22.2, on voit aussitôt que le pompage à l'aide d'un rayonnement non monochromatique dans toute la bande d'absorption de la transition $S_0 \to S_1$ ne change rien au résultat et que tous les développements restent valables.

Lors de la fluorescence d'un colorant excité ne se trouvant pas dans un résonateur, i.e. lors de son émission spontanée dans l'espace libre, les propriétés spectrales de cette émission ne sont déterminées que par la disposition mutuelle des termes S_0 et S_1 et par l'obligation de satisfaire au principe de Franck-Condon s'appliquant aux populations d'équilibre de ces niveaux vibratoires des termes S_0 et S_1. La situation change radicalement

lorsqu'on place le colorant excité dans un résonateur sélectif (ou comme on le dit souvent, dispersif) de grand Q. Posons pour simplifier les raisonnements que le résonateur est monomode et monofréquence. Lorsqu'on accorde le résonateur à une fréquence donnée contenue dans les limites de la raie de fluorescence, on sait que sous l'action de la réaction positive c'est justement à cette fréquence qu'évolue le dépeuplement radiatif du niveau supérieur concerné du terme S_1. Le niveau qui se dépeuple avec émission est repeuplé au cours de la thermalisation s'effectuant dans ce même état. Comme ce dernier processus évolue très rapidement (en 1 à 10 ps), on peut affirmer que toute l'énergie accumulée par le terme S_1 est utilisée dans l'émission monofréquence. L'émission stimulée dans le résonateur et la relaxation vibrationnelle de l'excitation dans le terme S_1 forment un canal d'émission-relaxation pour la transformation de l'énergie de pompage du terme S_1 en émission laser due à la transition $S_1 \rightarrow S_0$.

Il est évident qu'en réaccordant le résonateur sur une fréquence contenue dans les limites de la largeur spectrale de la raie de fluorescence du colorant, on modifie la fréquence d'émission. Dans ce cas et pour tous les régimes de fonctionnement jusqu'aux impulsions d'une durée inférieure au temps de la relaxation vibrationnelle dans le terme S_1 (synchronisation de modes), l'énergie accumulée par tous les niveaux vibratoires de S_1 sera dépensée pour assurer l'émission sur la nouvelle fréquence. Dans un résonateur non dispersif la fréquence de l'émission correspond au facteur d'amplification maximal, i.e. au maximum de la raie de fluorescence. On discerne ici l'analogie avec la compétition rotationnelle se manifestant dans les lasers à CO_2 (voir leçon 16).

Les transitions radiatives $S_1 \rightarrow S_0$ ne constituent pas le seul canal de dépeuplement de l'état S_1 par les molécules excitées. Sont également possibles les transitions radiatives entre S_1 et les autres états excités singulets. Ces transitions singulet-singulet peuvent donner lieu à une absorption à la fréquence de fluorescence et provoquer dans le laser à colorant des pertes dues au pompage et dépendant de l'intensité de ce dernier. Les spectres d'absorption singulet-singulet (S-S) dans les colorants sont pratiquement inexplorés et on ne connaît pas l'influence que peut avoir cette absorption sur le processus d'émission. De toute évidence il faut veiller à ce que les spectres de fluorescence et d'absorption S-S ne soient pas superposés et c'est justement le cas pour la plupart des colorants les plus utilisés.

L'absorption triplet-triplet (T-T) dont le spectre chevauche plus ou moins le spectre de fluorescence peut avoir un effet autrement nocif. La raison en est qu'entre des états de différentes multiplicités, les états S_1 et T_1 par exemple (voir fig. 22.2) existant dans les molécules de colorant compliquées, peuvent se produire des transitions non radiatives (conversion singulet-triplet). Les atomes, les molécules ou les complexes moléculaires présentant

une forte liaison spin-orbite et faisant simultanément partie du colorant et du solvant, accélèrent la conversion singulet-triplet puisqu'ils renforcent l'interaction entre les états singulets et triplets du colorant et favorisent le recouvrement de leurs fonctions d'onde.

La conversion singulet-triplet réduit le nombre de molécules à l'état S_1 pouvant effectuer une transition radiative à l'état S_0, ce qui diminue le rendement quantique de la fluorescence. D'autre part, comme la conversion singulet-triplet conduit au peuplement de l'état métastable T_1, elle ouvre la voie à une absorption triplet-triplet par les transitions $T_1 \to T_2$ qui augmente avec l'excitation du colorant et peut s'opposer à l'émission.

L'état triplet T_1 est un état métastable à vie longue. Les transitions radiatives à l'état S_0, bien que permises, ont une faible probabilité. L'émission résultant de transitions $T_1 \to S_0$ constitue la phosphorescence. Par rapport à la phosphorescence la durée de vie de l'état T_1 est de 1 ms. Comme on ne peut modifier la durée de vie radiative et comme il faut réaliser un dépeuplement plus rapide de l'état T_1 afin de réduire l'absorption T-T, on accorde une grande importance à la recherche de centres extincteurs de l'état triplet, dont la présence en solution accroît la probabilité de la conversion T_1-S_0 non radiative. Les agents les plus effectifs de suppression de l'état triplet dans les solutions de colorants pour laser sont l'oxygène et les hydrocarbures non saturés tels que C_8H_8 et $C_{10}H_{12}$. La concentration de ces substances doit être modérée afin de ne pas réduire la durée de vie du niveau laser supérieur.

Pour conclure cet examen des processus parasites de dépeuplement de l'état S_1, il faut citer encore l'éventualité de transitions non radiatives (conversion interne) entre les états S_1 et S_0 de même multiplicité qui diminuent le rendement quantique de la fluorescence. La probabilité de la conversion interne dépend de la structure des molécules du colorant, mais elle est généralement petite devant celle du dépeuplement de l'état S_1 par fluorescence.

Le rendement quantique de la fluorescence des colorants utilisés dans les lasers est compris entre les limites de 0,01 à 1,00.

Partant des résultats de cette brève analyse, le plus simple est de considérer d'abord un modèle à deux niveaux d'énergie, l'un étant l'état singulet fondamental S_0 et l'autre l'état singulet excité S_1. En notant N_0 et N_S les densités des populations totales des états S_0 et S_1 respectivement et en désignant par $\sigma_{SS}(\nu)$ la section de la transition radiative $S_1 \to S_0$, l'expression du facteur d'amplification du colorant à la fréquence ν s'écrira :

$$\alpha(\nu) = \left[N_S \exp\left(-\frac{E_1}{kT}\right) - N_0 \exp\left(-\frac{E_0}{kT}\right)\right] \frac{\delta E}{kT}\, \sigma_{SS}(\nu), \quad (22.1)$$

où E_1 et E_0 sont respectivement les énergies des groupes des niveaux de départ et de retombée des états S_1 et S_0. On rapporte les énergies E_1 et

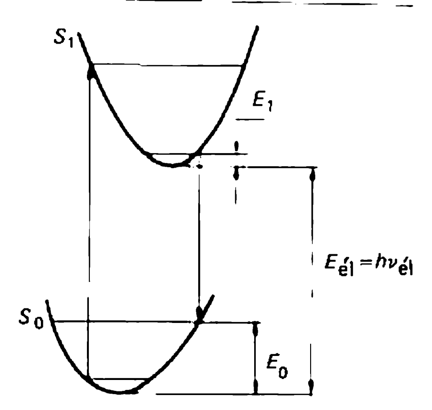


Fig. 22.3. Figure illustrant la condition d'une amplification positive.

E_0 à l'énergie minimale de chacun des termes. La transition radiative à la fréquence ν s'effectue entre les termes S_1 et S_0. L'intervalle énergétique $\delta E \ll kT$ permet de définir dans le spectre quasi continu des termes électroniques des groupes d'états de vibration-rotation très rapprochés qui constituent le niveau de départ et le niveau terminal de la transition $S_1 \to S_0$ (fig. 22.3).

Le spectre continu du terme électronique étant la superposition d'un grand nombre d'états vibratoires rapprochés correspond au cas de l'élargissement inhomogène des raies spectrales. A la transition stimulée à la fréquence ν ne prennent part que les molécules qui, étant excitées au terme considéré, possèdent des énergies contenues dans un intervalle correspondant à l'élargissement homogène de la raie d'émission. Le nombre de molécules ayant des énergies comprises dans l'intervalle δE est égal au produit $\varrho(E)\delta E$, où $\varrho(E) = dN(E)/dE$ est la densité des niveaux appartenant au terme considéré et localisé à proximité de l'énergie E. La densité des niveaux est régie à son tour par la loi de distribution de Boltzmann : $\varrho = C\exp(-E/kT)$, où la constante de normalisation C est définie par la condition que $\int_0^\infty \varrho dE$ doit être égale au nombre total de molécules correspondant au terme considéré. En appliquant ces considérations aux termes S_1 et S_0 et en admettant que pour ces termes δE et T sont constants, on arrive à l'expression (22.1).

On déduit de (22.1) que l'amplification est positive lorsque

$$N_S > N_0 \exp\left(-\frac{E_0 - E_1}{kT}\right). \tag{22.2}$$

D'après la figure (22.3) la fréquence d'émission pour laquelle on observe une amplification est donnée par

$$\nu = \nu_{él} - (E_0 - E_1)/h, \tag{22.3}$$

où $h\nu_{él}$ est égal à la différence des valeurs minimales de l'énergie dans les termes S_1 et S_0 ; $\nu_{él}$ est la fréquence dite de la transition purement électronique. Lorsque $E_0 > E_1$, l'amplification ne peut être positive que si $N_S < N_0$, i.e. si l'inversion n'est pas complète ; dans ce dernier cas $\nu < \nu_{él}$. On voit que dans le cas des colorants on a affaire à une inversion incomplète dans les transitions électrono-vibro-rotationnelles rappelant le cas des transitions vibro-rotationnelles dans les lasers à CO. Remarquons que dans le cas d'une thermalisation complète dans le terme singulet excité E_1 est voisin de zéro ; N_S peut alors être notablement inférieur à N_0, ce qui facilite beaucoup le choix de la source de pompage.

On peut obtenir une amplification aux fréquences $\nu > \nu_{él}$ lorsque $E_1 > E_0$; l'inversion doit alors être complète ($N_S > N_0$), mais la courte durée de vie du terme singulet excité S_1 s'y oppose.

Lorsque $E_1 \approx 0$, on peut écrire la formule (22.1) sous la forme

$$\alpha(\nu) = \left[N_S - N_0 \exp\left(-\frac{h(\nu_{él} - \nu)}{kT}\right)\right]\frac{\delta E}{kT}\,\sigma_{SS}(\nu), \qquad (22.4)$$

qui convient bien à l'étude de la dépendance spectrale $\alpha(\nu)$. Le spectre $\sigma_{SS}(\nu)$ coïncide avec le spectre de fluorescence, mais la quantité entre crochets dans (22.4) varie avec la position spectrale. Si N_S et N_0 sont donnés, cette quantité augmente lorsque ν diminue. Il s'ensuit que le maximum $\alpha(\nu)$ de la bande d'amplification est décalé du côté des grandes longueurs d'onde par rapport au maximum de la raie de fluorescence. Lorsque N_S croît, le rôle du second terme entre crochets (celui qui dépend de la fréquence) diminue, et la bande d'amplification se déplace vers les petites longueurs d'onde ; à mesure qu'on se rapproche de l'inversion complète ($N_S > N_0$), la position et la forme de la bande d'amplification se rapprochent de celles du spectre de fluorescence.

L'approximation (22.1) du modèle à deux niveaux d'énergie ne tient aucun compte des transitions singulet-singulet et triplet-triplet qui provoquent la réabsorption de la lumière émise dans le système des niveaux excités du colorant, ce qui entraîne une réduction du gain. Il a été signalé que c'est surtout l'absorption triplet-triplet qui est la plus nocive. En notant $\sigma_{TT}(\nu)$ la section de l'absorption *T-T*, et N_T la population du premier terme triplet, il est facile de trouver la condition du gain positif dans le cas d'une thermalisation complète des états S_1 et T_1 :

$$N_S\sigma_{SS}(\nu) > N_T\sigma_{TT}(\nu). \qquad (22.5)$$

L'occupation du terme triplet s'effectue lors de la conversion *S-T* qui évolue avec un temps caractéristique τ_{ST}. Le dépeuplement non radiatif du terme triplet accompagnant les transitions à l'état singulet fondamental (suppression de l'état triplet) s'effectue avec un temps caractéristique τ_T (on

néglige la relaxation de la fluorescence en raison de sa lenteur). Dans les conditions stationnaires $N_S/\tau_{ST} = N_T\tau_T$. On obtient finalement la condition du gain positif en régime continu qui se présente sous une forme purement spectroscopique :

$$\sigma_{SS}(\nu) > \sigma_{TT}(\nu)\tau_T/\tau_{ST}. \tag{22.6}$$

Ce résultat montre qu'il est souhaitable de supprimer l'état triplet, puisque celui-ci réduit le temps τ_T, et qu'il est également souhaitable de diminuer la probabilité de la conversion S-T qui, elle, allonge le temps τ_{ST}.

Lorsque la condition (22.6) n'est pas satisfaite, l'émission en régime continu ne peut avoir lieu. En régime d'impulsions avec un intense pompage à front raide, en raison de la différence des vitesses de peuplement N_S et N_T, la condition (22.5) peut être momentanément satisfaite, puisque N_S et N_T varient en fonction du temps sans que la condition (22.6) soit satisfaite. On peut donner une estimation simple en considérant l'approximation d'un modèle à trois niveaux (niveaux singulets fondamental et excité et un niveau triplet) et en négligeant l'émission stimulée à la fréquence d'amplification ; on utilise pour cela les équations d'évolution suivantes :

$$\begin{aligned} dN_S/dt &= -(1/\tau_S + 1/\tau_{ST})N_S + P(t)N_0, \\ dN_T/dt &= -N_T/\tau_T + N_S/\tau_{ST}, \\ N_0 + N_S &+ N_T = \text{const}, \end{aligned} \tag{22.7}$$

où $P(t)$ est le taux de passage des particules du niveau fondamental sur le niveau singulet excité ; $P(t)$ est proportionnel à la puissance du pompage optique.

On peut obtenir sur ordinateur la solution exacte de ces équations pour une impulsion de pompage arbitraire. Si $P(t)$ se déclenche en forme d'escalier à l'instant $t = 0$, puis reste constant et égal à P, l'intensité du pompage étant suffisamment grande pour que $PN_0 \gg N_S(1/\tau_S + 1/\tau_{ST})$ et si l'on pose que N_0 est une quantité constante, après le déclenchement du pompage, N_S augmente proportionnellement au temps : $N_S = PN_0t$. Dans le cas le plus défavorable de non-suppression de l'état triplet ($\tau_T \to \infty$), on trouve qu'après déclenchement du pompage, N_T croît proportionnellement au carré du temps :

$$N_T = PN_0t^2/2\tau_{ST}.$$

Comme le processus de peuplement du niveau triplet présente un caractère intégral lorsque la durée de vie de l'état triplet est long ($\tau_T \gg \tau_{ST}$), il existe un intervalle de temps pendant lequel l'absorption triplet-triplet n'est pas essentielle. En égalant, selon (22.5), les produits $N_S(t)\sigma_{SS}(\nu)$ et $N_T(t)\sigma_{TT}(\nu)$, on trouve la condition

$$t \leqslant 2(\sigma_{SS}(\nu)/\sigma_{TT}(\nu))\tau_{ST} \tag{22.8}$$

imposant une limite supérieure au temps d'existence d'une amplification en présence d'une absorption *T-T* notable. Quoique approximative, l'estimation (22.8) décrit la réalité d'une façon satisfaisante. Avec un temps de conversion *S-T* de 10 à 100 ns, cette estimation fournit une durée d'émission mesurée en nanosecondes pour les colorants ne pouvant fonctionner en régime continu.

Considérons maintenant la question de l'intensité de pompage requise pour obtenir une amplification positive dans les cas qu'on vient d'examiner.

Commençons par le régime continu. Compte tenu de l'absorption *T-T* et en supposant réalisée la thermalisation du terme, l'expression (22.4) s'écrit

$$\alpha(\nu) = \left\{\left[N_S - N_0 \exp\left(-\frac{h(\nu_{\text{él}} - \nu)}{kT}\right)\right]\sigma_{SS}(\nu) - N_T\sigma_{TT}(\nu)\right\}\frac{\delta E}{kT}. \quad (22.9)$$

Cette expression suppose que l'intervalle spectral de l'élargissement homogène δE est le même pour les termes *S* et *T*. La condition de l'amplification positive prend alors la forme simple :

$$N_S > N_0 \exp\left(-\frac{h(\nu_{\text{él}} - \nu)}{kT}\right) + N_T\frac{\sigma_{TT}(\nu)}{\sigma_{SS}(\nu)}. \quad (22.10)$$

Dans les conditions stationnaires $N_S = N_0 P(1/\tau_S + 1/\tau_{ST})^{-1}$, $N_T = N_S\tau_T/\tau_{ST}$ (cf. (22.7)), et la vitesse de pompage est donnée par

$$P = I_{\text{pomp}}\frac{\sigma_{SS}(\nu_{\text{pomp}})}{h\nu_{\text{pomp}}}, \quad (22.11)$$

où I_{pomp} est l'intensité du rayonnement de pompage, ν_{pomp} la fréquence du rayonnement de pompage et $\sigma_{SS}(\nu_{\text{pomp}})$ la section de l'absorption singulet-singulet correspondant à la transition $S_0 \to S_1$ à la fréquence de pompage. On en déduit la condition d'une amplification positive à la fréquence ν sous la forme

$$I_{\text{pomp}} > \frac{h\nu_{\text{pomp}}}{\tau_S}\left(1 + \frac{\tau_S}{\tau_{ST}}\right)\frac{\sigma_{SS}(\nu)/\sigma_{SS}(\nu_{\text{pomp}})}{\sigma_{SS}(\nu) - \sigma_{TT}(\nu)\tau_T/\tau_{ST}} \times$$
$$\times \exp\left(-\frac{h(\nu_{\text{él}} - \nu)}{kT}\right) \quad (22.12)$$

La signification physique de cette expression est parfaitement claire et correspond aux considérations développées ci-dessus. Généralement $\tau_S \ll \tau_{ST}$. Si la condition spectroscopique (22.6) est vérifiée, l'expression ci-dessus se trouve simplifiée :

$$I_{\text{pomp}} > \frac{h\nu_{\text{pomp}}}{\tau_S\sigma_{SS}(\nu_{\text{pomp}})}\exp\left(-\frac{h(\nu_{\text{él}} - \nu)}{kT}\right) \quad (22.13)$$

et devient encore plus évidente : l'intensité de pompage de seuil doit être

supérieure à l'intensité de la saturation de la transition singulet-singulet $0 \to 1$, intensité notablement réduite par le facteur de Boltzmann dont l'existence est déterminée par l'inversion sur quatre niveaux qui est caractéristique des lasers à colorants. Les estimations numériques dépendent fortement de la quantité $\nu_{él} - \nu$ qui a souvent une valeur comprise entre 200 et $2000\,\mathrm{cm}^{-1}$. Avec $\tau_S = 1$ ns, $\sigma_{SS}(\nu_{pomp}) = 5 \cdot 10^{-18}\,\mathrm{cm}^2$, $\lambda_{pomp} = 0{,}4\,\mu\mathrm{m}$, et à la température ordinaire la valeur de seuil de I_{pomp} est comprise entre 10^3 et $10^7\,\mathrm{W/cm}^2$.

En régime d'impulsions ayant une durée supérieure au temps de thermalisation dans l'état considéré, mais inférieure (conformément à (22.8)) au temps τ_{ST} de la conversion S-T, la condition (22.4) d'une amplification positive est différente de (22.10) :

$$N_S > N_0 \exp\left(-\frac{h(\nu_{él} - \nu)}{kT}\right). \qquad (22.14)$$

Pour évaluer la valeur de seuil de l'énergie de pompage il faut résoudre les équations (22.7) puis intégrer sur le temps la vitesse de pompage jusqu'à ce que la condition (22.14) commence à être vérifiée grâce à l'énergie dépensée pour faire passer les molécules de l'état S_0 à l'état S_1. Dans le cas général une telle évaluation de l'énergie de pompage est irréalisable, mais on peut arriver simplement à une estimation en procédant comme suit.

Pour des intervalles de temps plus courts que la durée de vie de l'état singulet S_1, le peuplement de cet état s'effectue surtout de façon impulsionnelle dans le système effectif à deux niveaux $S_0 \to S_1$. Dans le cas d'une saturation impulsionnelle la densité de l'énergie de saturation est égale, selon la formule (3.43), à $F_S \geqslant h\nu/2\sigma$. L'inversion sur quatre niveaux dans les lasers à colorants avec $\nu < \nu_{él}$ et avec le déplacement de Stokes convenable conduit à une diminution du nombre de particules devant être transférées à l'état supérieur, qui est donnée par la statistique de Boltzmann. On obtient ainsi une estimation de la densité d'énergie de pompage assurant une amplification positive au bout d'un temps inférieur à la durée de vie du terme singulet excité :

$$F_{pomp} > \frac{h\nu_{pomp}}{\sigma_{SS}(\nu_{pomp})} \exp\left(-\frac{h(\nu_{él} - \nu)}{kT}\right). \qquad (22.15)$$

Dans le cas où l'on s'intéresse à des intervalles de temps supérieurs à τ_S, $F_{pomp} = I_{pomp}\Delta t$ avec $\tau_S < \Delta t < t$, I_{pomp} étant donné par la formule (22.12) ou (22.13) ; dans le cas de colorants ne vérifiant pas la condition spectroscopique (22.6) le temps t est limité par (22.8).

On notera que dans cette analyse des valeurs de seuil de l'énergie (ou de l'intensité) de pompage il n'a été tenu compte ni des pertes d'énergie parasites dans le résonateur du laser, ni de l'énergie emportée par l'émission laser hors du résonateur ; cette analyse n'avait en vue que l'amplification

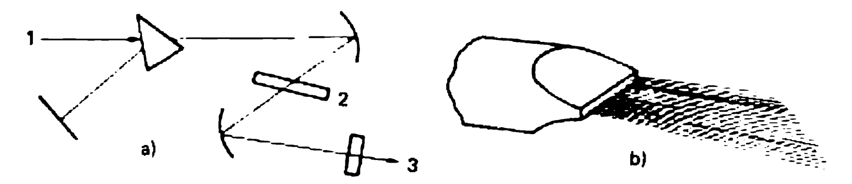


Fig. 22.4. Schéma d'un laser à jet de colorant (*a*) et représentation conventionnelle du jet (*b*) : *1* — rayonnement de pompage, *2* — plan du jet, *3* — émission laser.

« électronique » qui, en principe, caractérise la substance active et le procédé de pompage.

En omettant les détails techniques, notons que le pompage des colorants par le rayonnement impulsionnel des lampes flash a posé le problème de l'élaboration de lampes à éclats lumineux à forte intensité à front de montée raide de 0,1 à 1 μs. Mais c'est le pompage par laser qui assure les meilleurs résultats. En régime d'impulsions on utilise le deuxième harmonique du laser à rubis (0,347 μm), le deuxième (0,53 μm), le troisième (0,353 μm) et le quatrième (0,265 μm) harmonique du laser à néodyme ainsi que les émissions des lasers à cuivre, à azote et à excimères. L'utilisation de ces derniers permet d'assurer une haute cadence de répétition des impulsions.

Il peut être avantageux d'assurer le pompage des colorants à l'aide de lasers fonctionnant en mode asservi. Si les longueurs optiques des résonateurs du laser de pompage et du laser à colorant sont égales ou multiples l'une de l'autre, le laser à colorant fonctionnera dans le régime d'impulsions de très courte durée (picosecondes). L'émission d'impulsions lumineuses aussi brèves et de fréquence continûment accordable est un moyen extraordinaire de recherches en spectroscopie des processus rapides, en photochimie et en photobiologie.

En régime continu le pompage est assuré par un laser à argon dont l'émission focalisée en une tache de 10 à 100 μm permet de créer la grande intensité de pompage requise. Pour supprimer les distorsions thermo-optiques dans le milieu actif du laser ainsi que les conséquences d'une photolyse toujours possible du colorant, il est nécessaire de faire circuler le liquide actif avec une vitesse telle que celui-ci soit entièrement rénové dans la région active en l'espace de quelques microsecondes. La meilleure construction existant aujourd'hui est représentée sur la figure 22.4. Un jet de liquide plan-parallèle de très faible épaisseur est envoyé sous l'angle de Brewster par rapport à l'axe optique du résonateur. Les lasers de cette construction permettent d'obtenir des émissions stables de très grande monochromaticité.

Notons pour conclure que les lasers à colorants peuvent fonctionner dans les conditions de pompage continu en mode asservi (durée des petits

pics de 1 à 2 ps). Examinons enfin quelques colorants parmi les plus utilisés : colorant bleu de Nil, crésyl violet, rhodamine, coumarine. Le meilleur colorant pour laser est la rhodamine 6G émettant dans la gamme de 550 à 650 nm. Les meilleurs solvants sont l'alcool éthylique et l'eau distillée. La concentration du colorant ne doit pas excéder 10^{-2} de la concentration molaire afin d'éviter la formation de dimères et l'extinction due à une concentration excessive.

Il est possible de réaliser des solutions solides de colorants dans des polymères tel le polystyrène ou le polyméthacrylate de méthyle. Pour certaines applications on imbibe d'une solution de colorant une matrice de verre poreux finement dispersé transparent aux rayonnements laser et de pompage.

Vingt-troisième leçon. **LASERS À CENTRES COLORÉS**

Centres F. Méthodes de coloration des cristaux. Lacunes anioniques dans les cristaux d'halogénures alcalins. Centres F, F_2, F_2^+, F_2^-. Spectres d'absorption et de luminescence. Cycle de pompage optique. Caractéristiques des lasers. Transitions vibroniques et sans phonons. L'ion chrome. Laser à alexandrite.

La grande largeur de la raie de luminescence des colorants organiques rend possible un accord continu de la longueur d'émission des lasers dans une large gamme de valeurs. C'est la facilité avec laquelle on peut ajuster la longueur d'onde de l'émission qui constitue le principal avantage des solutions de colorants utilisés en qualité de substance active des lasers. Il n'existe malheureusement pas de colorants susceptibles de luminescence dans l'infrarouge à des longueurs d'onde supérieures à 1,0-1,5 μm. C'est pour cela que les potentialités qu'offrent les cristaux ioniques contenant des centres colorés pour l'élaboration de lasers accordables présentent un réel intérêt.

La luminescence des centres colorés (dits centres F) est à de nombreux points de vue semblable à celle des colorants. C'est ce qui explique la similitude des termes utilisés pour décrire des matières aussi différentes que sont les centres F dans les cristaux et les colorants organiques.

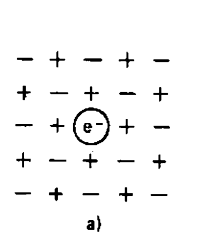
Le spectre de luminescence des centres colorés est bien souvent déplacé vers les grandes longueurs d'onde par rapport aux spectres des colorants organiques. C'est ce qui permet d'espérer pouvoir étendre la gamme d'émission accordable jusqu'à 3,0-3,5 μm.

Rappelons d'abord la structure et les propriétés optiques des centres F dans les cristaux ioniques. Dans nombre de cas la bande interdite des cristaux ioniques est suffisamment large pour que ces cristaux soient des diélectriques transparents dans toute la partie visible du spectre. Citons des exemples bien connus. Ce sont d'abord les cristaux d'halogénures alcalins

LiF, NaCl, KCl, etc., les fluorures alcalinoterreux à structure de la fluorine CaF_2, BaF_2, SrF_2, etc., le corindon Al_2O_3, etc. L'apparition de défauts dans le réseau cristallin peut s'accompagner de l'apparition de niveaux d'énergie supplémentaires dans la bande interdite, ce qui se traduit par l'apparition de nouvelles bandes d'absorption dans le spectre d'absorption du cristal, qui caractérisent aussi bien le cristal que le type de défaut. Lorsque l'une de ces bandes d'absorption se situe dans la partie visible du spectre, le cristal initialement incolore acquiert une coloration.

Les particularités spectrales des bandes d'absorption caractéristiques ne dépendent pas des causes qui leur ont donné naissance, puisque les centres colorés correspondants se forment sur la base de défauts ponctuels inhérents au cristal considéré. Les complexes de défauts ponctuels présentant leur propre fréquence d'absorption forment une large classe de formations qu'on désigne par le terme général de centres *F*. Il ne faut cependant pas perdre de vue que les centres *F*, qui sont des centres colorés inhérents aux cristaux ioniques, ne sont qu'un des types de défauts de la structure des cristaux.

En cristallographie on distingue plusieurs types de défauts des structures cristallines, qui tous sont des écarts à la structure cristalline idéale. On entend par défaut ponctuel un défaut de la structure cristalline dont l'étendue dans les trois dimensions est comparable à la distance interatomique dans les cristaux. Parmi les défauts ponctuels les plus simples, signalons les lacunes, i.e. l'absence d'un atome ou d'un ion dans un site cristallin qui normalement devrait être occupé. Dans les cristaux ioniques la lacune anionique, i.e. le manque d'un ion négatif dans le site approprié du réseau cristallin, se comporte comme une charge positive effective localisée. Lorsqu'un électron libre se trouve à proximité de cette lacune, il est capté par le champ de la lacune et se trouve immobilisé à l'emplacement de l'anion manquant. Dans les cristaux d'halogénures alcalins un électron localisé à proximité de la lacune anionique (manque d'halogène) constitue le centre coloré le plus simple de tous — le centre *F* proprement dit. La représentation symbolique et le modèle du centre *F* dans un cristal d'halogénure alcalin sont indiqués sur la figure 23.1. Cette structure des centres *F*



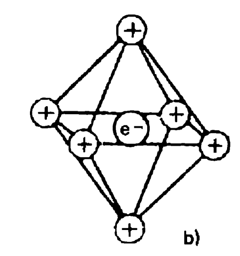


Fig. 23.1. Représentation conventionnelle (*a*) et modèle (*b*) d'un centre *F* dans un cristal d'halogénure alcalin.

permet de les assimiler à un atome hydrogénoïde et de décrire d'une façon satisfaisante leurs propriétés spectrales.

On crée des centres colorés dans les halogénures alcalins par les méthodes de coloration photochimique, additive et par bombardement électronique.

Dans le procédé photochimique les centres F apparaissent à la suite de l'irradiation du cristal par des rayons ultraviolets, X ou gamma. Pendant l'irradiation un ion halogène occupant son site normal absorbe un quantum de rayonnement et, perdant un électron, se transforme en un atome neutre qui va se loger dans un site interstitiel, laissant derrière soi une lacune anionique. L'électron libéré, capté par la lacune, forme un centre F. Les centres F ainsi créés sont thermiquement et optiquement instables. Les cristaux colorés perdent leur coloration lors de l'absorption de lumière par la bande F (même à basse température) ou lors de leur échauffement. La cause de cette instabilité des centres F réside en ce que lors de l'échauffement ou lors de l'excitation des centres F dans la bande d'absorption principale, les électrons quittent les lacunes et s'associent aux atomes d'halogène déplacés dans les sites interstitiels, qui sont des centres à propriétés de trou ayant une grande affinité pour les électrons, c'est-à-dire qu'ils se comportent comme des pièges électroniques plus profonds.

Dans le procédé additif les centres F apparaissent lorsqu'on échauffe le cristal dans la vapeur d'un métal alcalin. Par exemple, lorsqu'on chauffe des cristaux de NaCl ou KCl incolores dans la vapeur de sodium, ils acquièrent une intense coloration bleue. Pendant le chauffage le métal alcalin s'ionise facilement en libérant des électrons qui diffusent dans le cristal. Lors du refroidissement du cristal ainsi traité les électrons qui migraient librement sont captés par les lacunes anioniques et forment des centres F.

On trouve des lacunes dans des cristaux de n'importe quelle structure cristalline et à n'importe quelle température. Dans les conditions d'équilibre dans tout cristal stœchiométrique le nombre relatif de défauts ponctuels est donné par l'expression $n/N \approx \exp(-E/kT)$, E étant l'énergie de formation des défauts. Généralement l'énergie de formation d'une lacune est de l'ordre de 1 eV ; c'est pour cela que jusqu'aux températures de fusion des cristaux la concentration relative des lacunes d'équilibre ne dépasse pas 10^{-5} à 10^{-4}. Dans le cas des cristaux ioniques la formation des défauts ponctuels doit satisfaire à la condition de neutralité électrique du cristal tout entier. En conséquence, les défauts apparaissent par paires comportant soit une lacune et un ion interstitiel (cet ensemble est appelé défaut de Frenkel), soit deux lacunes portant des charges de signes contraires (défaut de Schottky). Pour évaluer la concentration d'équilibre de ces paires de défauts on utilise la formule indiquée ci-dessus, où E désigne maintenant l'énergie de formation du défaut complexe.

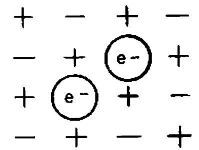


Fig. 23.2. Représentation conventionnelle d'un centre F_2 dans un cristal d'halogénure alcalin.

Lorsqu'on échauffe un cristal d'halogénure alcalin dans la vapeur du métal alcalin, les anions occupant des sites interstitiels s'associent aux ions métalliques et ces partenaires sortent du cristal. Par conséquent, dans les cristaux colorés par le procédé additif il ne peut y avoir des recombinaisons irréversibles des électrons des centres F avec des centres à propriétés de trous, ce qui signifie que les centres F sont dans ce cas stables.

Dans le procédé de coloration par bombardement électronique, la formation des centres F résulte de la pénétration d'électrons de grande énergie dans les profondeurs du cristal où ils sont captés par les lacunes anioniques.

Les défauts élémentaires manifestent une tendance marquée à former des associations (complexes et centres F) contenant deux ou plusieurs défauts simples s'étendant sur plusieurs sites contigus du réseau cristallin. Ces centres de coloration associés sont désignés par les symboles F_2, F_3, F_4, ... Le centre F_2 est une association de deux centres F occupant des sites anioniques voisins et sa structure est analogue à la quasi-molécule d'hydrogène (voir fig. 23.2).

Dans les halogénures alcalins colorés par le procédé additif et par le procédé d'irradiation, on ne trouve qu'un petit nombre de centres F associés à côté de centres F simples, surtout dans le cas de radiations ionisantes. La formation de centres F associés est favorisée par une élévation de température du cristal, puisque la migration des lacunes s'en trouve accélérée. Remarquons que la décomposition des centres F sous l'action de la lumière dans la région d'absorption propre de la bande F conduit à leur transformation photochimique en des centres F_2, F_3, F_4, etc. Généralement, lors de la coloration des cristaux il s'y forme tout un ensemble de plusieurs types de centres colorés.

Pour pouvoir obtenir des centres colorés d'un type déterminé il faut parfois soumettre les cristaux à des traitements photochimiques et thermiques assez compliqués. Sont particulièrement recherchés les centres F_2^+ et F_2^-. La formation d'un centre coloré de formule F_2^- résulte de la capture d'un électron supplémentaire par un centre F_2, tandis que le centre F_2^+ est un centre ionisé, i.e. un électron appartenant à deux lacunes anioniques voisines. Pour produire des centres F_2^+ et F_2^- il faut soumettre les cristaux à une série de traitements favorisant la formation de centres F_2 qu'on doit soumettre à une ionisation, ou placer les cristaux dans des conditions favorisant la fixation d'un électron supplémentaire. On utilise pour cela l'irra-

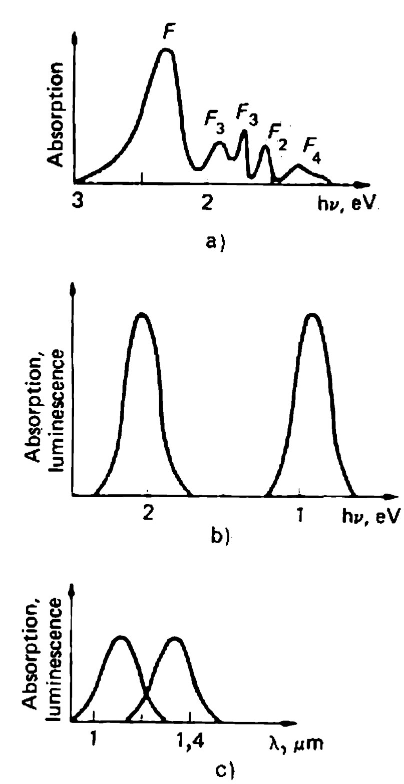


Fig 23.3. Spectres des centres colorés dans KCl (*a*), des centres *F* dans KBr (*b*) et des centres F_2^+ dans KF (*c*).

diation des cristaux par les rayons X ou par les électrons à la température de l'hélium liquide, l'irradiation par l'ultraviolet proche ou lointain, l'irradiation par la lumière dans la bande d'absorption des centres F_2, etc. Par ces différents procédés on arrive à obtenir des concentrations élevées (jusqu'à 10^{17}-10^{18} cm^{-3}) de centres d'un type donné.

Les états excités des centres colorés possedent une énergie de 1,5 à 3 eV (région visible du spectre). On a déjà indiqué que ce sont les bandes d'absorption correspondant aux transitions dans ces états qui déterminent la coloration des cristaux, qui diffère suivant le type du centre coloré. Lorsqu'on excite les centres colorés dans la région des bandes d'absorption, ils manifestent une intense luminescence dans le proche IR, caractérisée par de larges bandes spectrales et une durée de vie comprise entre 1 et 1000 ns. La figure 23.3 représente le spectre d'absorption des centres colorés électroniques dans KCl (*a*), les spectres d'absorption et de luminescence des centres *F* dans KBr (*b*) et des centres F_2^+ dans KF (*c*). On voit que les spectres d'absorption-luminescence des centres colorés ressemblent

beaucoup aux spectres des colorants organiques. La ressemblance est particulièrement nette dans le cas des centres F_2^+ et F_2^-.

Il convient de discuter la question de la largeur des spectres d'absorption et de luminescence des centres colorés qui est notablement supérieure à $10^3\ cm^{-1}$. Comme les centres colorés sont situés aux nœuds du réseau cristallin, ils sont soumis à une intense influence de la part du champ cristallin. A la différence des ions des terres rares incorporés en qualité d'impureté dans une matrice et dont la couche électronique $4f$ est protégée de l'action de ce champ par un effet d'écran (voir leçons 20 et 21), les centres colorés sont intimement liés au réseau cristallin. De ce fait aucun centre coloré, y compris le centre F proprement dit, ne peut être considéré comme un quasi-atome d'hydrogène libre (ou une quasi-molécule dans le cas de F_2) du point de vue des propriétés de relaxation et de la largeur spectrale des bandes d'absorption et d'émission. L'assimilation des centres colorés à des particules hydrogénoïdes, qui permet d'appliquer aux centres F (et F_2) les règles de sélection établies pour l'atome (ou la molécule) d'hydrogène et de définir les états d'énergie, ne permet que d'évaluer assez correctement la force d'oscillateurs des transitions possibles.

On ne doit pas perdre de vue que chaque électron localisé près d'une lacune anionique est soumis, de la part des ions plus proches voisins, à des forces quasi élastiques (cf. fig. 23.1 et 23.2). L'existence de ces forces détermine l'apparition de degrés de liberté vibrationnels chez les centres colorés dont les niveaux d'énergie électroniques acquièrent ainsi tout un système de sous-niveaux vibrationnels et les spectres deviennent cannelés. Le mouvement vibratoire d'un centre F au sein d'un corps solide est fort compliqué. L'existence d'un grand nombre de degrés de liberté vibrationnels fait que l'énergie potentielle d'un certain état électrono-vibratoire est une fonction d'un grand nombre de coordonnées. C'est pour cela que pour en donner une description schématique, on procédera comme on l'avait fait pour les grandes molécules des colorants organiques, i.e. on en donnera une représentation simplifiée dans un espace configurationnel conventionnel, où l'ensemble des coordonnées de configuration est remplacé par une seule coordonnée conventionnelle.

La figure 23.4 représente un diagramme configurationnel simplifié d'un centre F. Les états vibratoires situés dans les puits de potentiel des états électroniques fondamental et excité présentent vis-à-vis de la relaxation phononique une durée de vie de l'ordre de 1 ps et se recouvrent mutuellement. En conséquence, les transitions électroniques font apparaître de larges bandes continues d'absorption et de luminescence telles que représentées sur la figure 23.3. C'est pour cela que ces spectres ressemblent aux spectres d'absorption et de luminescence des molécules de colorants organiques en solutions (voir la leçon précédente). Notons que le temps

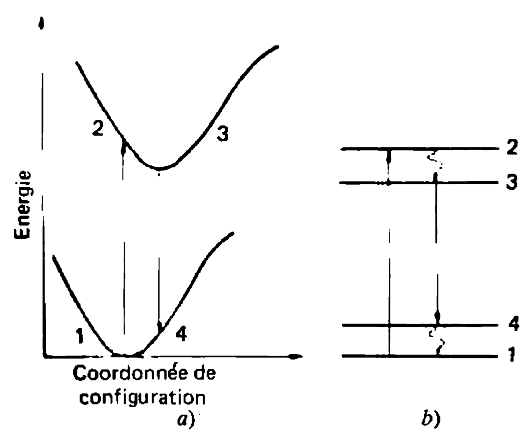


Fig. 23.4. Diagramme configurationnel (*a*) et représentation des niveaux d'énergie (*b*) d'un centre *F*.

de la relaxation vibrationnelle de 1 à 10 ps est une durée normale pour les processus de relaxation ayant lieu dans les milieux condensés lorsque l'état qui relaxe est fortement lié à son entourage.

Le diagramme de la figure 23.4 illustre le principe de fonctionnement des lasers à centres colorés. Le cycle de pompage optique est en tout point semblable à celui des lasers à colorants. Il en est de même en ce qui concerne la possibilité d'accord de la fréquence d'émission.

Le rayonnement de pompage détermine la transition de l'état 1 à l'état 2. Pour un centre *F* c'est une transition $1S \rightarrow 1P$ entre les états d'un atome hydrogénoïde possédant la plus grande probabilité et à laquelle est liée l'apparition de la bande d'absorption *F*. Dans le système des niveaux vibratoires de l'état électronique excité se produit alors une transition non radiative dans l'état excité relaxé 3. La transition du centre coloré de l'état électronique excité 3 à l'état fondamental 4 s'accompagne de luminescence. Le cycle de pompage se termine par une transition non radiative rapide $4 \rightarrow 1$. Le processus fait donc intervenir quatre niveaux d'énergie. L'inversion de population est réalisée au cours de la transition $3 \rightarrow 4$ en raison du rapport mutuel des durées de vie des niveaux 2, 3 et 4. La relaxation vibrationnelle des états 2 et 4 s'effectue en l'espace de 1 ps, tandis que la durée de vie de l'état 3 par rapport à la luminescence, créée par la transition $3 \rightarrow 4$, est égale à 10 ns. Par conséquent, pour un pompage moyennement intense déterminant la transition $1 \rightarrow 2$, on obtient une inversion de population sur la transition $3 \rightarrow 4$.

On peut donc affirmer que les centres colorés créés dans les cristaux ioniques constituent un milieu actif pour lasers accordables ; cela tient à ce qu'on arrive à y organiser un régime d'excitation à quatre niveaux, à

la grande largeur des bandes d'absorption et de luminescence, à un important décalage de Stokes dans l'émission, à la grande force des oscillateurs et à la grande concentration des centres (10^{17} à 10^{18} cm^{-3}). L'analyse théorique des conditions de réalisation d'une inversion de population, des régimes de fonctionnement et des effets parasites des lasers accordables à centres colorés est analogue à l'analyse qui a été faite pour les lasers à colorants organiques.

Les centres F proprement dits ne sont pas les meilleurs centres actifs des lasers du type considéré. Premièrement, les centres F se caractérisent par des pertes qui sont équivalentes à l'absorption S-T et T-T dans les colorants organiques. Deuxièmement, en raison du décalage de Stokes trop important, la fonction d'onde de l'état excité relaxé 3 ne recouvre pas suffisamment la fonction d'onde de l'état fondamental non relaxé 4, ce qui détermine une faible force d'oscillateur ($\leqslant 0{,}01$) de la transition $3 \rightarrow 4$. Enfin les centres F manquent de stabilité quant aux variations thermiques et à leur irradiation dans les limites de la bande F.

On obtient les meilleurs résultats avec les centres colorés des types suivants : F_2, F_2^+, F_2^-, F_A et F_B. Ces deux derniers sont des centres F tels que dans le plus proche entourage cationique de la lacune anionique du centre, on a remplacé un (centre F_A) ou deux cations (centre F_B) par d'autres cations alcalins (Li^+, K^+, Na^+, etc.) ayant un rayon ionique plus petit que celui du cation de l'halogénure alcalin considéré. Ces centres sont stables vis-à-vis des traitements thermiques et optiques et se forment par coloration additive des halogénures alcalins, suivie d'une irradiation des centres F initialement formés dans les limites de la bande d'absorption F à une température déterminée. On n'arrive pas à créer ces centres dans les cristaux de LiF. Avec les cristaux de fluorure de lithium les meilleurs résultats ont été obtenus en réalisant des lasers fonctionnant en régimes continu et impulsionnel, accordables dans la gamme des longueurs d'onde de 0,8 à 1,1 μm pour les centres colorés F_2^+ et dans la gamme de 1,1 à 1,3 μm pour les centres colorés F_2^-. On utilise surtout le pompage par laser. Le rendement atteint plusieurs dizaines de pour cent. En régime continu la puissance de sortie est de 0,1 à 1,0 W, en régime d'impulsions l'énergie de l'émission par impulsion atteint plusieurs dizaines de millijoules. Comme dans le cas des lasers à colorants, en régime de fonctionnement à mode bloqué on a obtenu des impulsions d'une durée de quelques picosecondes et de fréquence d'émission accordable dans toute la bande d'amplification.

Dans les cristaux de KCl et RbCl ce sont les centres F_A et F_B qui sont les plus efficaces et permettent de couvrir respectivement les gammes de 2,25 à 2,90 μm et de 2,25 à 3,30 μm.

Le spectre de luminescence des centres colorés connus dans les halogénures alcalins s'étend de 0,6 à 4,0 μm. Les lasers réalisés avec ces matériaux

ont permis d'assurer un accord continu dans les gammes de longueurs d'onde suivantes : 0,63 à 0,73 μm ; 0,8 à 1,5 μm ; 2,25 à 3,30 μm. Il existe de nombreux types de centres colorés, leur choix à l'instar du choix des colorants doit se fonder sur leurs propriétés d'émission et leurs possibilités d'exploitation dans la gamme des longueurs d'onde recherchée. Notons qu'il est possible d'élaborer des lasers à centres colorés existant non seulement dans les cristaux d'halogénures alcalins, mais aussi dans les cristaux de fluorures alcalino-terreux, la fluorine CaF_2 par exemple.

La caractéristique commune des lasers à milieux condensés est que leurs centres actifs sont des impuretés incorporées dans une matrice, qu'elle soit un verre, un cristal ou un liquide. Un rôle essentiel pour le fonctionnement de tous ces lasers revient au cycle de pompage optique faisant intervenir quatre niveaux d'énergie ; un rôle important revient également au spectre des vibrations (spectre phononique) de la matrice et à l'effet d'écran qui affecte le mouvement des électrons dans le centre actif dont la quantification fournit les états énergétiques utilisés pour l'émission laser. L'effet d'écran exerce une influence considérable sur les caractéristiques des différents lasers, qui diffèrent fortement suivant que la liaison des mouvements électronique et vibratoire est forte ou faible.

En effet, dans le cas des ions TR^{3+}, la couche $4f$ contenant l'électron optique est soumise à un important effet d'écran et l'influence du champ cristallin est faible. En conséquence, les vibrations du réseau exercent une faible influence. La liaison vibronique étant faible, les durées de vie des états excités sont grandes, les raies sont fines, il n'y a pas de décalage de Stokes de spectre de luminescence (voir leçon 21). Le système à quatre niveaux du cycle de pompage optique appartient au système des niveaux d'énergie de l'ion libre et ne change que fort peu lorsqu'on change de matrice.

Dans le cas des centres colorés et des molécules de colorants, le mouvement électronique est soumis à l'action directe du champ créé par leurs plus proches voisins. Cela implique que la liaison des mouvements électroniques avec les vibrations du réseau cristallin, du verre ou du solvant est forte. La conséquence en est la petitesse de la durée de vie des états excités, la grande largeur des raies spectrales et l'important décalage de Stokes du spectre de luminescence. Le pompage optique à quatre niveaux est rendu possible d'une part par la relaxation rapide dans les sous-niveaux vibratoires des états électroniques, qui sont fortement liés aux vibrations de la matrice, et d'autre part par ce que le principe de Franck-Condon est satisfait pour les transitions entre termes électroniques.

Les ions des métaux de transition du groupe du fer, qui est le premier groupe des éléments de transition classés dans l'ordre des numéros atomiques croissants dans le tableau de Mendéléev, contiennent dans leurs couches incomplètes des électrons $3d$ dépourvus de tout effet d'écran (cf. leçon

19). Lorsque ces ions seront incorporés dans une matrice cristalline, ils risquent d'être soumis à une influence notable du champ cristallin et donc à celle des vibrations du réseau cristallin. De ce fait on verra apparaître une structure vibrationnelle dans le spectre des transitions électroniques de l'ion. Les transitions deviennent électrono-vibrationnelles et s'accompagnent d'une variation simultanée de l'énergie électronique de l'ion d'impureté et de l'énergie des modes vibrationnels du réseau cristallin. On observera dans les spectres de luminescence des cristaux où la liaison vibronique n'est pas trop forte, à côté de raies fines correspondant à des transitions purement électroniques, de larges bandes correspondant à la structure purement vibronique du spectre d'états du centre d'impureté et déterminées par l'existence d'une liaison entre les électrons et les phonons.

L'intensité et la forme des bandes vibroniques dépendent du caractère et de la force de la liaison électron-phonon, autrement dit des propriétés de l'état électronique du centre d'impureté, de la force et de la symétrie du champ cristallin et du spectre phononique de la matrice. Les bandes larges des transitions électrono-phononiques présentent un décalage de Stokes important par rapport aux raies fines dues aux transitions purement électroniques. C'est cette situation particulière qui rend possible la création d'un laser à quatre niveaux utilisant des transitions vibroniques dans une large bande de fréquences.

En effet, on a réussi à réaliser des lasers à ions V^{2+}, Ni^{2+}, Co^{2+}, appartenant au groupe du fer, incorporés dans des matrices de MgF_2 et ZnF_2. Ces lasers possèdent une gamme d'accord assez étendue dans le proche IR. Malheureusement ces lasers ne peuvent fonctionner qu'à la température de l'azote liquide et on ne les aurait pas mentionnés n'était la découverte du laser à alexandrite (ou chrysobéryl dopé au chrome $BeAl_2O_4 : Cr^{3+}$) fonctionnant à la température ordinaire et à des températures plus élevées.

Les ions chrome qui appartiennent au groupe du fer sont souvent utilisés pour le dopage des milieux actifs pour lasers solides. Il suffit de rappeler que la première émission laser avait été obtenue avec des cristaux de rubis, i.e. des cristaux de Al_2O_3 dopés au chrome ($Al_2O_3 : Cr^{3+}$). On sait que l'émission du laser à rubis s'effectue à la température ordinaire sur un système de trois niveaux sur une raie correspondant à la transition entre l'état excité métastable ^2E et l'état fondamental $^4A_2$ (cf. fig. 20.2). Cette même transition a permis d'obtenir une émission avec des cristaux de grenat $Y_3Al_5O_{12}$ à 77 K. L'alexandrite est donc le troisième cristal après le rubis et le grenat où l'on fait travailler les ions chrome, mais cette fois avec un système de quatre niveaux, au lieu de trois comme avec les deux autres cristaux.

Examinons les propriétés du laser à alexandrite.

Le cristal de chrysobéryl $BeAl_2O_4$ est orthorombique. Les ions Al^{3+} oc-

cupent deux types de sites octaédriques non équivalents, l'un à symétrie par réflexion, l'autre à symétrie par inversion. Le nombre total de sites octaédriques occupés par Al^{3+} est égal à $3{,}5 \cdot 10^{22}\,cm^{-3}$. Exactement comme le rubis est le corindon α (Al_2O_3) où une partie des ions Al^{3+} a été remplacée de façon isomorphe par des ions Cr^{3+}, l'alexandrite dérive du chrysobéryl $BeAl_2O_4$ où une partie des ions Al^{3+} est remplacée par des ions Cr^{3+}.

L'alexandrite est un corps cristallin à haute température de fusion (1870 °C), assez dense (3,69 g/cm^3) et présentant une résistance mécanique assez élevée. Sa conductibilité thermique est plus de deux fois supérieure à celle du grenat et seulement deux fois moindre que celle du saphir. Sa dilatation thermique est presque isotrope et modérée. Ses propriétés mécaniques et thermiques satisfont bien aux conditions qu'impose leur utilisation pour les lasers. Ses propriétés optiques sont également satisfaisantes. Les cristaux d'alexandrite présentent d'excellentes propriétés optiques jusqu'à une teneur en ions chrome égale à 0,4-0,5 de celle d'ions Al^{3+}. Dans la gamme des fréquences d'émission les pertes optiques sont égales à 0,003 cm^{-1}. La résistance optique des cristaux d'alexandrite est comparable à celle du rubis. L'alexandrite est un cristal biaxe ayant un indice de réfraction proche de 1,75. La croissance par tirage d'un bain fondu (méthode de Tchokhralski) permet d'obtenir des cristaux de plusieurs centimètres de long. Un inconvénient majeur de l'alexandrite est la technologie de sa fabrication liée à la présence du béryllium et de son oxyde qui sont tous deux des substances toxiques.

Tout comme dans le rubis et le grenat, les ions chrome occupent dans l'alexandrite des sites octaédriques, de sorte qu'on sait à quoi attribuer les raies des spectres d'absorption et de luminescence. Dans le spectre de luminescence on trouve deux raies *R* bien définies et deux bandes larges ^2T et ^4T qui sont bien caractéristiques. La force et la position relative de ces transitions varient selon la nature de la matrice en raison de l'absence de tout écran masquant les électrons 3*d* des ions chrome. On a représenté sur la figure 23.5 le spectre de luminescence de l'alexandrite. On notera la présence dans ce spectre d'une raie fine à côté d'une bande large, c'est ce qui distingue ce spectre ainsi que les spectres analogues des ions des métaux de transition des spectres de luminescence des centres colorés et des colorants organi-

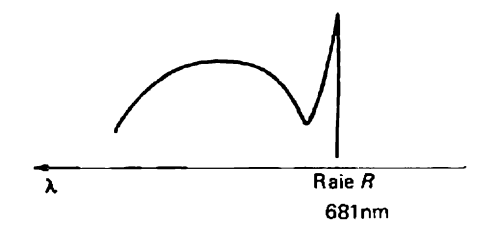


Fig. 23.5. Spectre de luminescence de l'alexandrite.

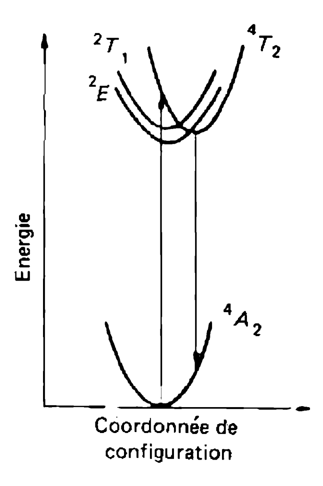


Fig. 23.6. Représentation des niveaux d'énergie de l'ion chrome incorporé à l'alexandrite.

ques. La bande large de luminescence correspond aux transitions vibroniques. L'émission de luminescence présente une polarisation rectiligne, le vecteur **E** est parallèle à l'axe *b* du cristal. Le spectre d'absorption est identique pour les deux polarisations et s'étend sur toute la région visible. L'émission dans la bande vibronique doit être attribuée aux ions Cr^{3+} occupant dans le réseau de $BeAl_2O_4$ les sites octaédriques à symétrie par réflexion.

La représentation du système de niveaux, ou plus exactement le diagramme de configuration des ions chrome dans l'alexandrite, est donnée sur la figure 23.6. La luminescence large bande et l'émission à fréquence accordable doivent être attribuées à la transition électrono-vibrationnelle $^4T_2 \to {}^4A_2$. On voit que le cycle de pompage optique à quatre niveaux résulte du décalage de Stokes du terme $^4T_2$. En comparaison des cristaux de rubis et de grenat, les cristaux d'alexandrite se caractérisent par une fente énergétique entre les états ^2E et $^4T_2$ beaucoup plus étroite, égale à 800 cm^{-1}. Le temps de thermalisation dans ces états est fort petit (0,1 ps environ), tandis que leur durée de vie propre représente 1,5 ms (^2E) et 6 μs ($^4T_2$). La grande durée de vie de l'état ^2E favorise l'accumulation de particules sur les niveaux lasers supérieurs, tandis que la petite durée de vie de l'état $^4T_2$, ce qui implique une grande section de la transition $^4T_2 \to {}^4A_2$, détermine un grand facteur d'amplification pour les transitions vibroniques. Les positions relatives des termes $^4T_2$ et ^2E, qui sont caractéristiques des cristaux d'alexandrite, déterminent une croissance de l'amplification dans le spectre vibronique lorsqu'on élève la température du cristal, vu que la population de l'état $^4T_2$ croît avec la température par rapport à la population de l'état métastable ^2E disposé au-dessous et qui accumule les particules pendant le pompage optique.

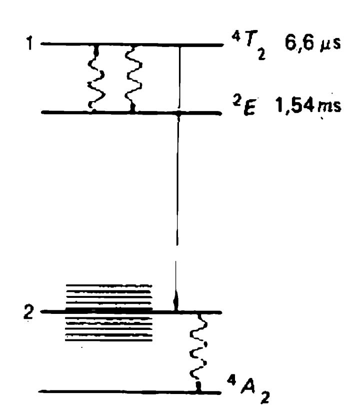


Fig. 23.7. Représentation du système de niveaux du laser à alexandrite : *1* — niveau de départ, *2* — niveau terminal de la transition laser 1 → 2.

On peut donc décrire le laser à alexandrite utilisant les transitions électrono-phononiques à l'aide du modèle représenté sur la figure 23.7. Le niveau laser de départ est le multiplet $^4T_2$ dont la population provient du niveau d'accumulation ^2E. Le niveau laser terminal est l'un des niveaux de la bande vibrationnelle équivalente correspondant à l'accord de fréquence réalisé. Dans les limites de cette bande le choix du niveau terminal est assuré par un dispositif d'accord, comme dans le cas des lasers à colorants. La relaxation phononique de l'état terminal jusqu'à l'état fondamental $^4A_2$ s'effectue en l'espace de 0,1 ps. Notons une nouvelle fois que dans le cas du pompage optique les particules excitées s'accumulent sur le niveau métastable ^2E, qui est propre aux ions Cr^{3+}, puis sont expédiées à travers la fente énergétique de 800 cm^{-1} sur le niveau $^4T_2$ par excitation thermique. Cette structure très spéciale de l'état laser supérieur et l'emmagasinage d'énergie dans cet état permettent de réaliser le fonctionnement en mode de commutation de Q avec émission d'impulsions géantes, qui ne peut être réalisé avec les lasers à colorants en raison de la faible durée de vie.

La gamme de changement d'accord des lasers à alexandrite est comprise entre 700 et 820 nm. La frontière rouge est assez nette puisqu'elle est déterminée par l'absorption à partir d'états excités qui est analogue aux absorptions singulet-singulet et triplet-triplet dans les colorants organiques. La frontière bleue de la gamme de changement d'accord est constituée par la raie R (681 nm) et par le creux dans le spectre de luminescence qui apparaît lorsqu'on s'approche de la raie R en allant du côté des ondes longues. Dans la gamme de changement d'accord la section d'amplification est égale à $7 \cdot 10^{-21}$ cm^2 à 300 K et à $2 \cdot 10^{-20}$ cm^2 à 475 K.

Les caractéristiques énergétiques de ce laser sont fort attrayantes. Si l'on effectue le pompage, à l'aide d'une lampe flash à xénon, une tige d'alexandrite de 6 mm de diamètre et de 75 mm de longueur émet en régime d'impul-

sions espacées dans le temps une énergie de 5 à 10 J et en régime d'impulsions à fréquence de répétition de 5 à 100 Hz la puissance moyenne est de 35 à 70 W. En mode de commutation de Q on a obtenu des impulsions géantes d'une durée de 30 à 200 ns et dont la longueur d'onde est accordable dans toute la bande de changement d'accord de 700 à 820 nm.

Le laser à alexandrite a révélé les nouvelles potentialités de l'ion Cr^{3+} qui n'ont pas pu se manifester dans le laser à rubis. Comme l'énergie de l'état $^4T_2$ dépend fortement de la matrice dans laquelle sont incorporés les ions Cr^{3+}, on doit s'attendre à ce qu'une situation spectroscopique analogue à celle de l'alexandrite se retrouve dans d'autres matrices. Dans ce cas on disposera de nouveaux matériaux pour laser à faible seuil d'émission, fonctionnant selon un schéma à quatre niveaux d'énergie, accordable en fréquence dans une large gamme spectrale.

Vingt-quatrième leçon. LASERS À SEMICONDUCTEURS

Propriétés spécifiques des lasers à semiconducteurs. Bandes permises. Semiconducteurs à transitions directes et indirectes. Lumière de recombinaison. Niveau de Fermi et quasi-niveaux de Fermi. Condition d'inversion de population. Recombinaison non radiative. Rendement quantique interne.

L'électronique quantique est essentiellement une électronique des états liés auxquels correspondent des niveaux d'énergie discrets et des raies relativement fines des transitions de résonance. Plus l'électron d'un centre actif est isolé de l'influence des actions extérieures, plus sa durée de vie à l'état lié dépend du temps de dépeuplement spontané et plus la finesse de la raie de la transition de résonance est proche de la finesse extrême. Inversement, plus l'électron est sujet aux influences extérieures, plus les transitions entre ses états liés, pouvant être utilisées pour obtenir l'effet laser, produiraient des raies de luminescence et d'amplification larges. Les exemples en sont bien connus. C'est le cas des lasers à colorants, à centres colorés, à l'alexandrite, des lasers à gaz moléculaires sous haute pression, etc.

Jusqu'à présent on n'a considéré que des lasers dont les centres actifs présentaient des niveaux d'énergie discrets relativement fins. On peut cependant créer une inversion de population même si le spectre énergétique des centres actifs présente de larges bandes d'états permis, séparées les unes des autres par des bandes interdites de largeur notable. Telle est la situation dans les lasers à semiconducteurs, que nous nous proposons de décrire ici.

La particularité la plus marquante des lasers à semiconducteurs est que l'inversion de population est réalisée sur des transitions entre des états électroniques se trouvant dans des bandes d'énergie différentes du cristal semiconducteur. Ces bandes d'énergie résultent de l'éclatement des niveaux d'énergie des électrons de valence des atomes formant le réseau cristallin

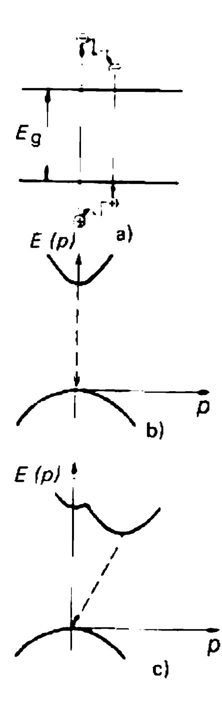


Fig. 24.1. Transitions optiques interbandes dans les semiconducteurs.

sous l'action de l'intense champ cristallin périodique créé par les atomes du cristal. Immergés dans ce champ, les atomes se dépouillent de leurs électrons de valence qui ne sont plus localisés. On peut dire qu'en présence d'un champ périodique fort les électrons de valence des atomes du cristal semiconducteur sont collectivisés. Ce sont les mouvements d'ensemble des électrons collectivisés dans les bandes d'énergie permises du cristal semiconducteur qui déterminent la conductibilité électrique du cristal.

On sait que dans les semiconducteurs on trouve deux types de porteurs de charge : les électrons dans la bande de conduction et les trous dans la bande de valence. Supposons que sous l'influence d'une action extérieure (pompage) des électrons, excédentaires par rapport à la concentration électronique d'équilibre, apparaissent dans la bande de conduction et une quantité équivalente de trous apparaissent dans la bande de valence. Le retour à l'équilibre impliquant la recombinaison des électrons et des trous excédentaires, i.e. la transition interbandes, peut donner lieu à l'émission d'un rayonnement optique (fig. 24.1, *a*).

La probabilité des transitions interbandes radiatives est importante dans le cas de transitions directes, ce qui signifie qu'on peut les représenter par une droite verticale sur un diagramme représentant l'énergie E des porteurs de courant en fonction de leur quasi-impulsion p. Comme chaque transition

optique interbandes donne lieu à l'apparition de porteurs de charge libres, la loi de la conservation de l'impulsion doit être vérifiée dans ces transitions. Compte tenu de la petitesse de l'impulsion du photon, cela signifie que la quasi-impulsion de l'électron doit rester constante lors des transitions. Dans le cas de semiconducteurs dits directs pour lesquels le maximum de la courbe potentielle, constituant la limite supérieure de la bande de valence, et le minimum de la courbe potentielle, constituant la limite inférieure de la bande de conduction, correspondent à la même valeur de la quasi-impulsion p (fig. 24.1, *b*), les transitions verticales relient les extrémums de la bande de valence et de la bande de conduction, i.e. les régions de ces bandes permises qui sont peuplées en premier lieu par les porteurs excédentaires. On dit alors que la transition est permise, ce qui signifie que la création d'une population de porteurs hors d'équilibre est favorisée dans toute la mesure du possible. Les semiconducteurs directs conviennent particulièrement bien à l'élaboration de lasers. Dans le cas d'un semiconducteur indirect (fig. 24.1, *c*) les porteurs de charge s'accumulent dans les états caractérisés par des quasi-impulsions différentes ; les transitions verticales sont irréalisables en raison de l'absence de particules susceptibles de recombiner, tandis que les transitions obliques sont rigoureusement interdites.

Dans le cas des semiconducteurs directs, la grande probabilité des transitions radiatives et la grande densité d'états dans les bandes permettent de réaliser des valeurs extrêmement élevées du facteur d'amplification qui, dans certains cas favorables, peut dépasser 10^4 cm^{-1}. Dans les lasers à diélectriques solides dopés par des impuretés faisant fonction de centres actifs, qui ont été étudiés dans ce qui précède et qu'on appelle lasers solides pour les distinguer des lasers à semiconducteurs, on utilise les transitions entre les niveaux d'énergie discrets d'ions isolés. Comme dans ces matériaux la concentration des particules actives et la probabilité des transitions sont plus petites, les facteurs d'amplification sont plus petits, ce qui conduit à augmenter les dimensions linéaires des éléments actifs. Les lasers à colorants et à centres colorés ressemblent le plus aux lasers à semiconducteurs ; en raison de la forte interaction de leurs centres actifs avec la matrice, ils présentent de larges bandes d'énergie et en raison de la grande concentration des centres actifs, ils possèdent de grands facteurs d'amplification, quoique inférieurs à ceux des lasers à semiconducteurs.

Une particularité importante des lasers à semiconducteurs, qui les distingue des autres lasers à milieux condensés, est la conductibilité électrique des semiconducteurs qui permet d'assurer leur pompage à l'aide du courant électrique et de transformer directement l'énergie électrique en émission laser.

Les lasers à semiconducteurs occupent en électronique quantique une place à part et se distinguent des autres types de lasers par plusieurs propriétés importantes.

Au point de vue des applications pratiques, les lasers à semiconducteurs présentent les avantages suivants :

1. Compacité déterminée par l'énorme facteur d'amplification des semiconducteurs.

2. Haut rendement déterminé par l'efficacité de la transformation en émission laser de l'énergie électrique injectée par pompage dans des monocristaux de semiconducteurs de haute perfection cristalline.

3. Large gamme de longueurs d'onde d'émission déterminée par la possibilité de choisir un matériau semiconducteur ayant une largeur de bande interdite correspondant à l'émission par transitions interbandes pratiquement en tout point de l'intervalle spectral s'étendant de 0,3 à 30 μm.

4. Accord continu de la longueur d'onde d'émission déterminé par la variation des propriétés spectrales et optiques des semiconducteurs, en premier lieu de la largeur de la bande interdite, en fonction de la température, de la pression, du champ magnétique, etc.

5. Mise en action rapide déterminée par la petitesse des temps de relaxation et la possibilité de créer pratiquement instantanément des électrons et des trous hors d'équilibre par pompage électrique ; il en découle la possibilité de moduler l'émission en modulant le courant de pompage à des fréquences atteignant 10 GHz.

6. Construction simple déterminée par la possibilité d'assurer le pompage par le courant continu, ce qui rend les lasers à semiconducteurs compatibles avec les circuits intégrés de l'électronique des semiconducteurs, avec les dispositifs de l'optique intégrée et avec les lignes de transmission optique à fibres conductrices de lumière.

Les inconvénients des lasers à semiconducteurs découlent, comme dans bien d'autres cas, de leurs avantages. Les petites dimensions des lasers à semiconducteurs déterminent leur faible puissance de sortie (faible énergie). Comme tous les dispositifs à semiconducteurs, ces lasers supportent mal les surcharges (un flux lumineux de quelques mégawatts par cm^2 détruit le laser) et les surchauffes qui relèvent le seuil d'auto-excitation et entraînent la destruction du laser si sa température dépasse une limite dépendant du type de laser.

On a obtenu une émission laser avec un grand nombre (plusieurs dizaines) de matériaux semiconducteurs. Ces matériaux doivent présenter, outre une grande pureté chimique et une bonne structure monocristalline, une grande homogénéité optique et une faible probabilité de recombinaison non radiative des électrons et des trous.

Examinons le principal mécanisme de luminescence des semiconducteurs — la recombinaison radiative des électrons et des trous.

La recombinaison des électrons et des trous dans un semiconducteur est le processus qui fait passer l'électron de la bande de conduction dans

la bande de valence, ce qui entraîne l'élimination d'une paire électron de conduction-trou. La recombinaison implique toujours la transition du porteur de courant sur un niveau de plus faible énergie situé soit dans la bande de valence soit sur un niveau d'impureté situé dans la bande interdite.

A l'équilibre thermodynamique la recombinaison compense la génération thermique des porteurs, les taux de ces processus inverses étant tels qu'ensemble ils assurent la distribution de Fermi pour les électrons et les trous d'après les énergies.

Il existe plusieurs mécanismes de recombinaison qui se distinguent les uns des autres par l'utilisation de l'énergie libérée par la recombinaison des électrons et des trous. Si l'excédent d'énergie est libéré sous forme d'un quantum de rayonnement, la recombinaison est dite radiative. Cet acte élémentaire de génération de lumière dans les semiconducteurs est semblable à la désexcitation radiative d'un état excité dans les systèmes à spectres discrets. La recombinaison peut être non radiative et dans ce cas l'énergie libérée sert à exciter les vibrations du réseau cristallin, en définitive à échauffer le cristal. De toute évidence la recombinaison non radiative est exactement semblable à la relaxation non radiative de l'énergie d'excitation dans les systèmes à spectres discrets.

Dans le cas de la recombinaison radiative le nombre total d'actes d'émission est proportionnel au produit np des concentrations des électrons (n) et des trous (p). Lorsque les concentrations des porteurs sont petites, ce mode de recombinaison est peu opérant. Aux grandes concentrations de porteurs supérieures à 10^{16}-10^{17} cm^{-3}, les semiconducteurs deviennent des sources efficaces de lumière de recombinaison, qui est émise dans une gamme assez étroite de longueurs d'ondes près du bord d'absorption propre du semiconducteur.

Le rayonnement résulte de la recombinaison interbandes des porteurs (cf. fig. 24.1, *a*). La luminescence résultant de la recombinaison interbandes se manifeste non seulement dans les semiconducteurs intrinsèques, mais aussi dans les semiconducteurs fortement dopés. Dans ce dernier cas le spectre énergétique du semiconducteur est fortement déformé près des bords de la bande interdite, parce qu'aux fortes concentrations d'impuretés les niveaux d'impuretés se rassemblent en une bande d'impureté qui recouvre partiellement ou complètement la bande permise adjacente. Dans ces conditions l'énergie des quanta de lumière de recombinaison peut être légèrement différente de la valeur nominale de la largeur de bande interdite du semiconducteur considéré. Néanmoins, pratiquement dans tous les processus de recombinaison radiative évoluant dans les lasers à semiconducteurs, l'énergie $\hbar\omega$ de la transition interbandes est peu différente de l'énergie E_g de la bande interdite.

L'existence d'un processus de recombinaison radiative spontanée témoi-

gne de la possibilité d'élaborer un laser sur cette base. Pour obtenir un gain dans le spectre d'émission de la recombinaison spontanée, il faut que l'émission stimulée de photons l'emporte sur leur absorption. La condition nécessaire est alors l'existence d'une inversion de population. Il faut donc créer dans les lasers à semiconducteurs une inversion de population pour les transitions de recombinaison radiative. Examinons les conditions d'une inversion de population dans les semiconducteurs.

Pour pouvoir préciser les conditions de réalisation d'une inversion de population, il faut connaître les niveaux d'énergie concernés, les sections de leur excitation, les temps de relaxation, etc. Cette approche est peu réaliste même si elle était possible, lorsqu'il s'agit d'une classe de substances aussi étendue que celle des semiconducteurs. Heureusement il existe des considérations thermodynamiques assez générales qui, tenant compte de la statistique des électrons dans les semiconducteurs, permettent d'établir les conditions générales de l'inversion dans ces matériaux.

Quel que soit le mécanisme de la recombinaison radiative, les photons créés vérifient les lois générales de la théorie des rayonnements. Le taux d'occupation d'un volume V par les photons de fréquence ω d'un mode de rayonnement donné est égal à

$$dN_\omega/dt = (A + BN_\omega)/V, \tag{24.1}$$

où N_ω est le nombre de photons du mode considéré. Le premier terme dans (24.1) concerne l'émission spontanée, tandis que le second représente la différence des taux d'émission stimulée et d'absorption des photons. Dans le cas de la recombinaison radiative chaque acte d'émission d'un photon s'accompagne de la disparition d'une paire électron-trou et chaque acte d'absorption d'un photon donne naissance à une paire électron-trou.

On établit une relation entre le coefficient d'émission spontanée A et le coefficient d'émission stimulée B à l'aide de la thermodynamique, comme on l'avait fait dans la première leçon. Selon la statistique de Bose-Einstein, à la température T le nombre d'occupation d'équilibre d'un mode donné (pour les deux polarisations inverses) est égal à

$$\overline{N_\omega} = \frac{2}{\exp(\hbar\omega/kT) - 1}. \tag{24.2}$$

A l'équilibre $d\overline{N_\omega}/dt = 0$ et en vertu de (24.1) on a donc

$$A/B = -\overline{N_\omega}. \tag{24.3}$$

Pour poursuivre notre analyse il faut tenir compte du caractère spécifique des semiconducteurs. Choisissons dans le spectre des états électroniques deux niveaux d'énergies $E_2 > E_1$. Le taux de recombinaison radiative de la transition $E_2 \rightarrow E_1$ est proportionnel au produit de la concentration des

électrons peuplant le niveau E_2 et de la concentration des trous peuplant le niveau E_1.

Les électrons sont régis par la statistique de Fermi-Dirac. La probabilité de trouver un électron dans un état d'énergie E est donnée par la distribution de Fermi

$$f(E) = \left[\exp\frac{E - F}{kT} + 1\right]^{-1}, \tag{24.4}$$

où F est l'énergie (le niveau) de Fermi. La probabilité de trouver un trou sur un niveau d'énergie E est égale à la probabilité pour que ce niveau ne soit pas occupé par un électon et vaut donc

$$1 - f(E) = \left[\exp\frac{F - E}{kT} + 1\right]^{-1}. \tag{24.5}$$

Le taux de recombinaison spontanée, qui est proportionnel au nombre d'électrons occupant le niveau E_2 et au nombre de trous occupant le niveau E_1, peut être écrit sous la forme

$$A = A_0 f(E_2)[1 - f(E_1)], \tag{24.6}$$

où A_0 est un coefficient de proportionnalité.

En procédant de même, on trouve que le coefficient B, qui détermine dans (24.1) la différence des taux d'émission stimulée et d'absorption, est donné par

$$B = B_2 f(E_2)[1 - f(E_1)] - B_1 f(E_1)[1 - f(E_2)], \tag{24.7}$$

où B_1 et B_2 sont des coefficients de proportionnalité. En portant ces expressions de A et B dans (24.3) et en tenant compte des distributions d'équilibre (24.2) et (24.4), on obtient l'équation

$$\exp\frac{\hbar\omega}{kT} - 1 = 2\frac{B_2}{A_0}\left[\frac{B_1}{B_2}\exp\frac{E_2 - E_1}{kT} - 1\right]. \tag{24.8}$$

Par hypothèse, les photons d'énergie $\hbar\omega$ apparaissent par recombinaison radiative bande-bande ayant lieu entre les niveaux E_2 et E_1 ; par conséquent, $\hbar\omega = E_2 - E_1$. L'équation (24.8) sera alors vérifiée à condition que $B_2 = B_1 = A_0/2$, autrement dit lorsque

$$B = \frac{A_0}{2}[f(E_2) - f(E_1)]. \tag{24.9}$$

Il s'ensuit que la différence entre le taux d'émission stimulée de photons par recombinaison radiative au cours de la transition interbandes et le taux d'absorption des photons au cours de la même transition sera positive sous la condition que

$$f(E_2) > f(E_1). \tag{24.10}$$

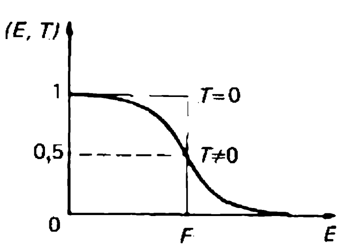


Fig. 24.2. Distribution de Fermi (F — niveau de Fermi).

Si $f(E)$ représente la distribution de Fermi (24.4) illustrée par la figure 24.2, cette condition ne peut être vérifiée à l'équilibre thermodynamique pour deux niveaux d'énergies $E_2 > E_1$.

Remarquons d'une part que les niveaux E_2 et E_1 sont séparés par une bande interdite et se situent respectivement dans la bande de conduction et dans la bande de valence, et d'autre part que les porteurs hors d'équilibre, i.e. les électrons hors d'équilibre se trouvant dans la bande de conduction et les trous hors d'équilibre se trouvant dans la bande de valence et qui sont dus à une excitation extérieure, possèdent des durées de vie finies dans ces bandes. Pendant cette durée de vie l'équilibre thermodynamique n'existe pas et le système ne peut donc être caractérisé par un niveau de Fermi unique. Mais si dans le gaz d'électrons et dans le gaz de trous, pris séparément, il s'établit, au cours d'un temps inférieur à la durée de vie des porteurs dans leurs bandes, des états de quasi-équilibre de type Fermi, si la température est la même dans tout le système et si les gaz ne sont pas en équilibre mutuel, on peut définir un quasi-niveau de Fermi pour les électrons F_n dans la bande de conduction et un quasi-niveau de Fermi pour les trous F_p dans la bande de valence.

Rien ne justifie à priori l'introduction de ces fonctions de distribution pour les électrons et pour les trous se trouvant en excédent dans leurs bandes respectives. La justification de cette proposition est fournie par ce que le temps de thermalisation (0,1 ps) des électrons dans la bande de conduction de certains semiconducteurs est de trois à quatre ordres de grandeur plus petit que le temps de thermalisation interbandes (1 à 10 ns).

Revenons à la condition d'inversion (24.10). Ecrivons $f(E_2)$ et $f(E_1)$ sous les formes qui viennent d'être établies :

$$f(E_2) = \left(1 + \exp\frac{E_2 - F_n}{kT}\right)^{-1}, \quad f(E_1) = \left(1 + \exp\frac{E_1 - F_p}{kT}\right)^{-1}, \tag{24.11}$$

où F_n et F_p sont les quasi-niveaux de Fermi respectivement pour les électrons et pour les trous ; on déduit de (24.10) une condition équivalente mais plus concrète :

$$F_n - F_p > E_2 - E_1. \tag{24.12}$$

Comme la valeur minimale de la différence $E_2 - E_1$ est égale à la largeur E_g de la bande interdite, la condition d'inversion pour les transitions inter-bandes s'exprime par la relation simple :

$$F_n - F_p > E_g. \tag{24.13}$$

Il s'ensuit que le pompage qui crée l'état hors d'équilibre doit être suffisamment intense pour que les quasi-niveaux de Fermi viennent se placer à l'intérieur des bandes permises correspondantes. Cela signifie que le gaz électronique et le gaz de trous sont dégénérés, que tous les niveaux de la bande de valence d'énergie $E_1 > F_p$ sont pratiquement vides et que tous les niveaux de la bande de conduction d'énergie $E_2 < F_n$ sont pratiquement entièrement peuplés d'électrons (fig. 24.3). Dans ces conditions les photons dont l'énergie est comprise dans les limites

$$E_g < \hbar\omega < F_n - F_p \tag{24.14}$$

ne peuvent initier des transitions entre la bande de valence et la bande de conduction et ne seront donc pas absorbés. Les transitions inverses de la bande de conduction à la bande de valence sont cependant possibles. La recombinaison stimulée radiative correspondant à ces transitions est la cause de l'émission laser. Les inégalités (24.14) déterminent la largeur de la bande d'amplification correspondante.

L'intensité de la recombinaison radiative dépend de la structure de bande du semiconducteur considéré, du carré de l'élément de matrice de la transition envisagée, de la concentration de paires de recombinaison. Le taux de la recombinaison radiative, i.e. le nombre de transitions donnant lieu à l'émission par unité de volume et dans l'unité de temps, dépend naturellement des facteurs énumérés. Comme la recombinaison radiative évolue parallèlement à la recombinaison non radiative, le taux total de recombinaison est égal à la somme du taux de recombinaison radiative ($1/\tau_{rad}$) et du

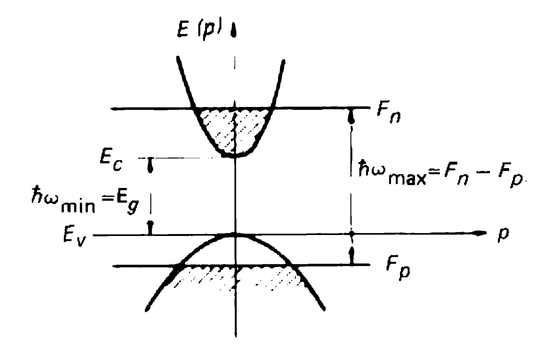


Fig. 24.3. Distribution inversée des électrons dans un semiconducteur monovallée.

taux de recombinaison non radiative ($1/\tau_{n.rad}$) :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{1}{\tau_{n.rad}}. \tag{24.15}$$

La part relative d'actes de recombinaison radiative dans le processus de recombinaison global est évidemment égale au rapport des taux correspondants $1/\tau_{rad}$: $1/\tau$. Ce même rapport indique la part de l'énergie contenue dans l'ensemble des électrons et des trous hors d'équilibre, qui est libérée lors de la recombinaison radiative. On a défini ainsi le rendement quantique interne de la recombinaison radiative :

$$\eta_{int} = \frac{1/\tau_{rad}}{1/\tau_{rad} + 1/\tau_{n.rad}}. \tag{24.16}$$

Cette quantité caractérise la qualité du matériau semiconducteur. Un dopage convenable et l'emploi de cristaux de haute qualité permettent d'obtenir pour la plupart des semiconducteurs des valeurs de η_{int} voisines de 100 %.

Dans une transition bande-bande, la probabilité d'une recombinaison non radiative phononique est faible. Lorsque la concentration des porteurs est peu importante, le principal mécanisme de recombinaison est la recombinaison par l'intermédiaire de niveaux d'impureté situés dans la bande interdite et localisés à proximité des atomes d'impureté ou des défauts de structure. On notera l'analogie de ce processus avec les mécanismes de relaxation non radiative faisant intervenir des niveaux intermédiaires dans le cas de cristaux diélectriques dopés par des impuretés (cf. leçon 21). De nombreux défauts et impuretés peuvent jouer le rôle de centres de recombinaison, mais on ne les connaît pas tous. Si la concentration de ces centres est trop élevée, par suite d'une technologie défectueuse par exemple, le matériau semiconducteur ne convient pas à son utilisation dans les lasers.

A mesure que la concentration des porteurs augmente, le rôle de la recombinaison Auger augmente. Il s'agit d'une recombinaison par chocs électroniques lors de laquelle l'énergie libérée par recombinaison d'un électron et d'un trou est cédée à un troisième porteur. Ce processus se manifeste aux grandes concentrations de porteurs libres, car il implique le choc simultané de trois porteurs. Le rôle de la recombinaison Auger est surtout notable dans les semiconducteurs à bande interdite étroite.

Comme les équations décrivant la recombinaison en cascade et la recombinaison Auger ne sont pas linéaires, la dissociation non radiative des paires électron-trou n'est pas exponentielle et ne peut donc, en toute rigueur, être caractérisée par une constante de durée de vie. Pour une estimation grossière de l'ordre de grandeur des taux de recombinaison non radiative on peut utiliser des valeurs expérimentales des sections des processus concernés. Dans le cas d'un processus de recombinaison en cascade,

la section de capture par les centres de recombinaison peut varier de 10^{-12} à $10^{-22}\,cm^2$, le coefficient de recombinaison correspondant est compris entre $5 \cdot 10^{-6}$ et $5 \cdot 10^{-16}\,cm^3/s$. Pour une concentration des centres de recombinaison égale à $10^{16}\,cm^{-3}$, le taux de recombinaison est égal à $5\text{-}5 \cdot 10^{10}\,s^{-1}$. Le coefficient de recombinaison Auger est compris entre 10^{-25} et $10^{-32}\,cm^6/s$. Pour une concentration de porteurs libres égale à $10^{19}\,cm^{-3}$ on trouve un taux de recombinaison égal à $10^6\text{-}10^{13}\,s^{-1}$.

Ces estimations montrent que dans le cas de matériaux réels on peut fort bien atteindre un rendement quantique interne de la recombinaison radiative proche de 100% (cf. formule (24.16)). Une bonne technologie de croissance des cristaux semiconducteurs permet d'exclure l'influence nocive de la recombinaison en cascade, mais on ne peut en principe éliminer la recombinaison Auger dont le taux croît proportionnellement au cube de la concentration des porteurs ($\sim n^3$).

Ainsi, si la condition d'inversion (24.13) et l'inégalité $\tau_{rad} \ll \tau_{n.rad}$ sont vérifiées, on peut obtenir une émission laser dans les cristaux semiconducteurs.

L'utilisation des semiconducteurs en électronique quantique a été suggérée, en 1959, par N. Bassov.

Vingt-cinquième leçon. LASERS À SEMICONDUCTEURS (SUITE)

Lasers à injection. Distribution des porteurs dans un cristal semiconducteur à jonction $p - n$. Injection de porteurs. Structure de bande d'un semiconducteur à jonction $p - n$. Semiconducteur dégénéré à jonction $p - n$. Structure de bande. Inversion créée par injection de porteurs dans la jonction $p - n$ d'un semiconducteur dégénéré. Rendement. Puissance. Hétérojonctions. Gamme des longueurs d'onde du rayonnement émis. Accord de fréquence.

Examinons les méthodes de création de paires électron-trou excédentaires.

Il existe plusieurs méthodes de création d'une inversion de la population électronique entre les bandes de valence et de conduction d'un cristal semiconducteur. Le pompage par faisceau électronique, qui assure la création de paires de porteurs excédentaires et conduit à l'émission laser, présente une grande efficacité et peut être utilisé pour un grand nombre de matériaux, y compris les matériaux à grande largeur de bande interdite (gamme des courtes longueurs d'onde). Néanmoins le procédé de pompage le plus utilisé est l'excitation des semiconducteurs par passage d'un courant continu qui injecte des électrons et des trous dans la région de la jonction $p - n$ de la diode à semiconducteur. Les lasers à diodes à injection sont les plus utilisés en raison de leur simplicité, de leur fiabilité et de leur grand rendement.

Lorsqu'on met en contact un semiconducteur de type p et un semiconducteur de type n, il se forme entre eux des barrières de potentiel qui affectent notablement les concentrations des porteurs dans la zone de transition entre ces deux semiconducteurs. Les propriétés de cette zone de transition, appelée jonction p — n, dépendent de la tension appliquée à cette structure. Dans bien des cas la caractéristique courant-tension de la zone de contact entre les semiconducteurs des types n et p est non linéaire et ce contact acquiert les propriétés d'une diode à semiconducteur.

Il est bien connu que les jonctions p — n sont largement utilisées en électronique des semiconducteurs pour le redressement, la conversion de courants électriques et pour l'amplification et la génération d'oscillations électriques. Nous examinerons dans ce qui suit l'utilisation des jonctions dans les lasers à semiconducteurs, qui est fondée sur l'introduction de porteurs hors d'équilibre dans la région de la jonction.

Afin d'exclure l'influence de phénomènes de surface incontrôlables, il faut que les deux types de semiconducteur soient créés dans le même monocristal en y réalisant une distribution convenable d'un donneur et d'un accepteur (fig. 25.1). Si les impuretés sont complètement ionisées, dans le domaine de gauche du cristal, où l'on trouve une forte concentration d'accepteurs N_a, la conductibilité est de type p avec une concentration de trous, qui sont ici les porteurs majoritaires, égale à $p \approx N_a - N_d$. Dans

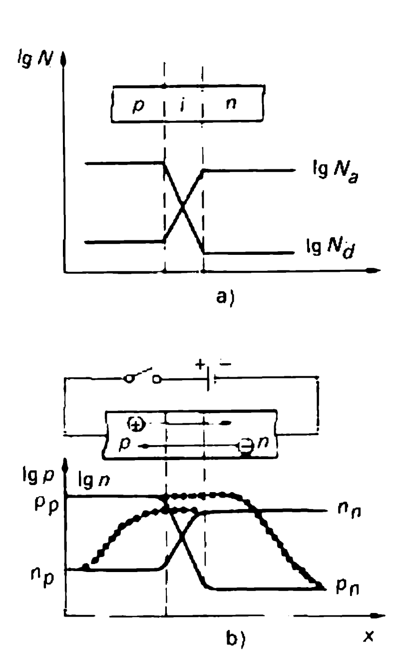


Fig. 25.1. Représentation schématique d'une jonction p — n (a) et de l'injection de porteurs dans la jonction p — n (b).

l'autre partie du cristal la conductibilité est de type n (électronique) et la concentration des porteurs majoritaires (électrons) est égale à $n \approx N_d - N_a$ (N_d — concentration des donneurs). Entre les régions p et n du cristal se forme la zone de transition de la jonction $p — n$ technologique à l'intérieur de laquelle la concentration des impuretés varie fortement en fonction de l'épaisseur de cette zone. Dans une mince couche de la zone de transition où les donneurs et les accepteurs se compensent ($N_d \approx N_a$) la conductibilité est intrinsèque (i). En toute rigueur, toute jonction $p — n$ est une jonction $p — i — n$.

La distribution requise des donneurs et des accepteurs peut être réalisée par différents procédés technologiques : par alliage, par tirage d'un bain fondu, par diffusion en phase gazeuse, par diffusion à partir d'une phase liquide, par implantation d'ions, etc. Se comportent en accepteurs dans un semiconducteur donné les atomes des éléments qui appartiennent aux colonnes du tableau de Mendéléev se trouvant à gauche du groupe contenant l'élément principal du semiconducteur, tandis que les donneurs appartiennent à un groupe situé à droite de l'élément principal. Ainsi pour le silicium et le germanium (éléments du quatrième groupe) les éléments du troisième groupe (le bore par exemple) sont des accepteurs et les éléments du cinquième groupe (le phosphore par exemple) sont des donneurs. Dans l'arséniure de gallium GaAs un des composés des semiconducteurs de formule $A^{III}B^{V}$, le zinc et le cadmium sont des accepteurs (IIe groupe), tandis que le sélénium et le tellure sont des donneurs (VIe groupe).

Lorsqu'un semiconducteur à jonction $p — n$ se trouve à l'état d'équilibre et sa jonction n'est traversée par aucun courant, la concentration p_p des porteurs majoritaires (trous) dans le semiconducteur de type p est grande et constante. Dans la zone de jonction la concentration des trous diminue et lorsqu'on passe dans le semiconducteur de type n où les trous sont des porteurs minoritaires, leur concentration p_n est petite.

De même la concentration des électrons varie de la grande valeur n_n dans la région n (les électrons y sont les porteurs majoritaires) jusqu'à la petite valeur n_p dans la région p où les électrons sont des porteurs minoritaires.

Si l'on applique une tension continue à la jonction en portant le semiconducteur p à un potentiel positif par rapport au semiconducteur n, la jonction sera traversée par un courant positif (courant dit direct). Les trous passent alors de la région p dans la région n, tandis que les électrons passent de la région n dans la région p. Les trous qui sont parvenus dans la région n et les électrons qui sont parvenus dans la région p y deviennent des porteurs minoritaires et doivent recombiner avec les porteurs majoritaires présents dans les zones p et n adjacentes à la jonction $p — n$.

Comme la durée de vie des porteurs vis-à-vis de la recombinaison est

finie, la recombinaison des porteurs ne se produit pas instantanément, de sorte que dans une zone d'une certaine étendue au-delà de la jonction les concentrations des trous dans la région n et des électrons dans la région p sont notablement plus grandes que les concentrations d'équilibre n_p et p_n dans ces régions. Afin de compenser la charge d'espace ainsi formée les électrodes d'amenée du courant envoient des électrons dans la région n et des trous dans la région p. De ce fait les concentrations des deux types de porteurs augmentent des deux côtés de la jonction, ce qui signifie que près de la jonction apparaît une zone quasi neutre de forte conductivité. C'est le principe de l'injection de porteurs dans une jonction p — n. On a représenté au bas de la figure 25.1 la distribution des concentrations des porteurs lors de l'injection et la distribution d'équilibre (en l'absence de courant à travers la jonction).

Dans l'approximation d'une épaisseur de la jonction, qui est petite devant la longueur de diffusion des électrons et des trous, les concentrations des porteurs injectés aux frontières de la jonction p — n dans un semiconducteur non dégénéré sont données par les formules

$$n = n_p \exp(eU/kT), \quad p = p_n \exp(eU/kT), \tag{25.1}$$

où e est la charge de l'électron, U la chute de tension sur la jonction. A la température $T = 300\,\mathrm{K}$ on trouve $e/kT \approx 40\,\mathrm{V}^{-1}$. Par conséquent, l'application d'une faible tension suffit pour faire varier fortement la concentration des porteurs minoritaires aux frontières de la jonction p — n. Avec $U \approx 0{,}25\,\mathrm{V}$ la concentration varie de $e^{10} \approx 10^4$ fois.

Examinons la structure de bande d'un semiconducteur à jonction p — n. Pour un semiconducteur intrinsèque la largeur de la bande interdite est une constante caractéristique. Dans les semiconducteurs de type p les impuretés de type accepteurs créent des niveaux d'énergie disposés dans la bande interdite à proximité immédiate du haut de la bande de valence. Lorsque la concentration des accepteurs devient grande, leurs niveaux se confondent avec la bande de valence, ce qui a pour résultat de réduire la largeur de la bande interdite par le bas. Dans les semiconducteurs de type n les impuretés de type donneurs réduisent la largeur de la bande interdite par le haut. Il s'ensuit que dans un seul et même cristal semiconducteur la bande interdite est disposée plus haut dans la région de type p que dans la région de type n.

Lorsqu'on passe d'une région à l'autre, i.e. lorsqu'on traverse une jonction p — n, les frontières des bandes s'infléchissent graduellement de telle sorte que la bande interdite de la région p rejoigne la bande interdite de la région n. La structure de bande d'un semiconducteur à jonction p — n présente à l'état d'équilibre la forme schématisée sur la figure 25.2, *a*. En outre, à l'état d'équilibre, dans ce semiconducteur le niveau de Fermi

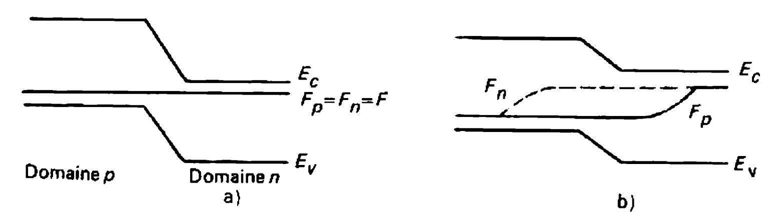


Fig. 25.2. Quasi-niveaux de Fermi dans une jonction p — n non dégénérée : *a*) en l'absence de porteurs injectés ; *b*) avec injection de porteurs.

est le même dans tout le cristal et doit se situer au-dessous du milieu de la bande interdite là où prédominent les accepteurs, et au-dessus du milieu de la bande interdite là où prédominent les donneurs. Ce décalage mutuel des bandes interdites dans les régions n et p d'un semiconducteur à jonction p — n est indispensable pour qu'un seul niveau de Fermi puisse se trouver simultanément au-dessous (région p) et au-dessus (région n) du milieu de la bande interdite (fig. 25.2, *a*).

Pour injecter des porteurs, on applique une tension U à la jonction p — n, ce qui rompt l'équilibre, et le décalage mutuel des bandes interdites dans les régions p et n diminue de la quantité eU et, ce qui compte surtout, le niveau de Fermi F se divise en un quasi-niveau F_p pour les trous et un quasi-niveau F_n pour les électrons, qui sont nettement différents dans la zone de la jonction. Loin de la jonction ces quasi-niveaux se confondent, mais près de la jonction la différence $F_n - F_p$ est égale à

$$F_n - F_p = eU. \tag{25.2}$$

En théorie des semiconducteurs les relations (25.1) et (25.2) se déduisent de considérations énergétiques simples.

La figure 25.2, *b* illustre la marche des quasi-niveaux de Fermi dans la zone de jonction lorsqu'on injecte des porteurs minoritaires dans un semiconducteur non dégénéré. Dans le cas des semiconducteurs non dégénérés (i.e. faiblement dopés) même une injection importante de porteurs n'arrive pas à écarter suffisamment les quasi-niveaux de Fermi F_p et F_n pour que soient vérifiées les conditions d'inversion (24.13). C'est ce cas qu'illustre la figure 25.2. Lorsque les régions n et p du cristal sont fortement dopées, les gaz d'électrons et de trous peuvent être fortement dégénérés dans les régions correspondantes du cristal.

Le critère de dégénérescence des fermions est l'existence d'un écart notable de leur distribution énergétique par rapport à la distribution de Boltzmann. La formule (24.4) et la figure 24.2 montrent que cet écart est petit lorsque $\exp[(E - F)/kT] \gg 1$, devient déjà notable pour $\exp[(E - F)/kT] \lesssim 1$ (dégénérescence faible) et devient très important pour

$\exp[(E - F)/kT] \ll 1$ (dégénérescence forte). Comme il n'y a pas d'électrons dans la bande interdite, la limite inférieure de leur énergie correspond au bas (E_c) de la bande de conduction. La condition d'une dégénérescence forte des électrons s'exprime donc par l'inégalité

$$\exp[(E_c - F_n)/kT] \ll 1. \qquad (25.3)$$

Cela implique que le niveau de Fermi F_n des électrons doit se situer dans la bande de conduction. De même dans le cas d'une forte dégénérescence des trous, leur niveau de Fermi F_p doit se situer dans la bande de valence.

Le niveau de Fermi représente une énergie caractérisant le type de semiconducteur, son état et sa composition. Pour nos besoins ce qui importe est que la position des niveaux de Fermi dépende de façon univoque de la concentration des porteurs. Lorsque à la suite d'un fort dopage par des impuretés ionisantes type p ou n la concentration des porteurs devient supérieure à la densité d'états effective dans la bande de valence ou dans la bande de conduction, le niveau de Fermi vient se placer dans la bande correspondante et le gaz de trous (ou d'électrons) devient dégénéré. Indiquons pour fixer les idées qu'à 300 K et dans le cas où la masse effective du porteur est égale à la masse de repos de l'électron libre, la densité effective d'états d'impureté, au-delà de laquelle le semiconducteur est dégénére, est égale à $2{,}5 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$.

Il résulte de ce qui précède que pour la fabrication des diodes pour laser il faut utiliser des semiconducteurs fortement dopés, afin que les gaz de trous et d'électrons contenus respectivement dans les régions p et n du cristal soient fortement dégénérés. Dans ces conditions, même sans aucune injection de porteurs, le niveau de Fermi F_p sera situé dans la bande de valence et le niveau F_n dans la bande de conduction (fig. 25.3, *a*). La déformation de la structure de bande dans la zone de la jonction p — n résultant d'une injection de porteurs dans le sens positif est alors suffisante pour

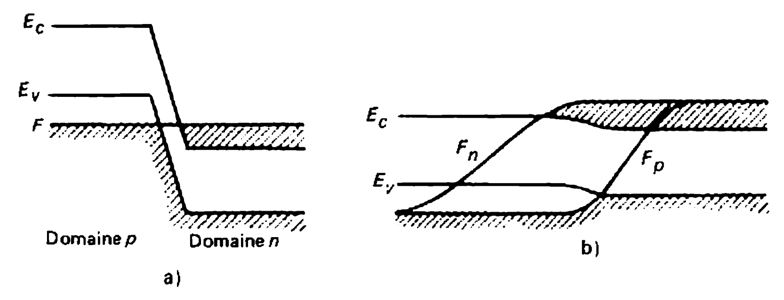


Fig. 25.3. Quasi-niveaux de Fermi dans une jonction p — n dégénérée : *a*) en l'absence de porteurs injectés ; *b*) avec injection de porteurs. Les régions hachurées sont remplies d'électrons.

que soit vérifiée la condition d'inversion (24.13), c'est ce qu'illustre la figure 25.3, *b*. La largeur de la zone de transition active où $F_n - F_p \geqslant E_c - E_v = E_g$ peut être notablement supérieure à la largeur technologique de la jonction. Dans cette zone sont réalisées les conditions requises pour l'amplification de la lumière émise dans l'intervalle spectral (24.14) par les transitions de recombinaison interbandes stimulées. La zone de transition active représentée sur la figure 25.3, *a* en coordonnées énergie-distance, correspond à la région d'inversion représentée sur la figure 24.3, *b* en coordonnées énergie-quasi-impulsion.

L'effet laser résultant de l'inversion créée par la méthode d'injection de porteurs dans la jonction *p* — *n* a été obtenu dans plusieurs semiconducteurs monovallée à transitions directes. L'un des meilleurs est le laser à l'arséniure de gallium. La diode est réalisée dans une pastille de monocristal de GaAs de dimensions transversales et longitudinales de l'ordre de 0,1 à 1 mm. La pastille est découpée dans un monocristal de type *n* fortement dopé avec Te ou Se. Après diffusion ou implantation d'une impureté de type *p* (accepteurs Zn, Cd), la face supérieure de la pastille acquiert une conductibilité de type *p*, et à faible profondeur de la surface (10 à 100 μm) on trouve une jonction *p* — *n* plane dont la zone de transition a une épaisseur de 1 à 10 μm. On recouvre d'une couche d'or les surfaces extérieures des régions *n* et *p*, après quoi on fixe le cristal par sa face *n* (soudure à l'étain, colle) à un support bon conducteur de la chaleur (le meilleur support serait un support de diamant, on utilise souvent le saphir). La figure 25.4 donne une idée de cette construction. Lorsqu'on fait passer un courant intense (correspondant à une densité de courant de 1000 A/cm^2) dans le sens direct, on crée une inversion de population dans une zone mince près de la jonction *p* — *n*. Comme le facteur d'amplification est fort important, les faces latérales du cristal (n = 3,6 ; R = 30 %) peuvent jouer le rôle de miroirs de Fresnel et l'émission peut avoir lieu dans un cristal de faible longueur.

Un des procédés technologiques permettant d'obtenir des miroirs plan-parallèles limitant la cavité résonnante du laser est le clivage des faces laté-

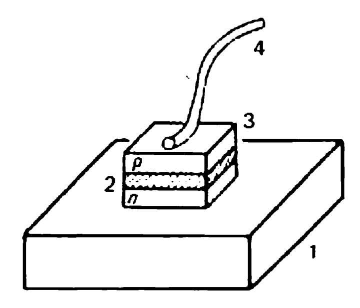


Fig. 25.4. Schéma d'un laser à injection : *1* — support, *2* — plan de la jonction *p* — *n*, *3* — cristal semiconducteur, *4* — électrode d'amenée du courant.

rales du cristal. Le rayonnement laser sort du cristal par les stries formées par l'intersection de la zone active de la jonction avec les faces partiellement réfléchissantes du cristal. Le diagramme de rayonnement correspondant présente les dimensions angulaires de 5° × 50°. Pour obtenir une meilleure directivité on utilise une cavité résonnante extérieure ; dans ce cas les faces latérales du cristal doivent subir soit un blanchissement, soit être orientées sous l'angle de Brewster par rapport à l'axe du résonateur. La réalisation technique de ces mesures se heurte souvent à des difficultés notables.

Le rendement du laser défini par le rapport de la puissance de l'émission à la puissance de pompage dissipée par la diode est proportionnel au rendement quantique interne η_{int} de la lumière de recombinaison (cf. formule (24.16)) et au rapport de l'énergie E_g de la bande interdite, exprimée en volts, à la chute de tension E_d dans la diode :

$$\eta = \eta_{int} E_g / E_d. \tag{25.4}$$

Lorsque η_{int} est proche de 100 % et la chute de tension dans les électrodes métalliques et dans les régions p et n du semiconducteur est petite, le rendement η peut être fort important. Dans le cas d'une diode laser à l'arséniure de gallium refroidie par de l'azote liquide, son rendement atteint 70 à 80 %, ce qui montre que les lasers à semiconducteurs à injection sont les lasers les plus efficaces. Malheureusement leur puissance de sortie est faible en raison surtout de la petitesse de la zone de la jonction $p - n$. En continu, avec une surface d'émission égale à 10^{-4} cm^2, la puissance d'émission atteint 10 W (GaAs, 77 K).

La puissance de sortie du laser est proportionnelle au rendement quantique et à la différence entre la densité de courant de pompage J et sa valeur de seuil J_{seuil} :

$$P \propto (J - J_{seuil})\eta_{int}. \tag{25.5}$$

A mesure que la température s'élève, le rôle de la recombinaison non radiative croît et le rendement quantique interne η_{int} diminue. D'autre part, lorsque la température s'élève, la différence entre les taux d'émission stimulée et d'absorption (24.7) diminue rapidement, ce qui entraîne une diminution du facteur d'amplification. Compte tenu de la condition (24.13) d'inversion de population dans les semiconducteurs et des définitions (24.11) des quasi-niveaux de Fermi, on constate que le premier terme de (24.7) diminue lorsque la température s'élève, tandis que le second terme de cette expression augmente avec la température. Il s'ensuit que pour obtenir une amplification positive, on doit augmenter le courant d'injection. Or cela entraîne une croissance rapide de la valeur de seuil de la densité de courant avec la température. Plus on augmente le courant d'injection, plus le cristal s'échauffe et à partir d'une certaine température le régime d'émission conti-

nue devient impossible. La valeur de la température maximale permettant un fonctionnement du laser en régime continu dépend de la construction de ce dernier et notamment des conditions d'évacuation de la chaleur. A la température de l'hélium liquide on arrive à évacuer de la diode 30 à 40 W de chaleur, à la température de l'azote liquide ce chiffre descend à 10 W et à la température ordinaire à 1 W environ.

L'allure de la variation de la valeur de seuil de la densité de courant en fonction de la température dépend essentiellement de la construction de la diode et des conditions de son fonctionnement. Pour les lasers à l'arséniure de gallium fonctionnant aux températures de l'azote liquide, la densité de courant de seuil croît proportionnellement à T^3, autrement dit très rapidement. A 77 K pour un laser à GaAs $J_{seuil} \approx (2 \text{ à } 3)\cdot 10^2$ A/cm^2. Entre la température de l'hélium liquide et la température ordinaire pour le laser à GaAs la densité de courant de seuil croît de 10^2 jusqu'à 10^5 A/cm^2.

Par conséquent, en continu la puissance d'émission est limitée par la surchauffe du cristal due au courant de pompage.

En impulsions, la puissance pouvant être émise à la température de l'azote liquide par un laser à l'arséniure de gallium alimenté par des impulsions du courant d'injection d'une durée de 0,5 à 1 μs atteint 100 W environ. La limitation de la puissance en régime d'impulsions est généralement déterminée par l'autodestruction du cristal par le flux optique qu'il émet. A la température ordinaire on fait fonctionner ces lasers en régime d'impulsions avec une fréquence de répétition des impulsions de rayonnement allant jusqu'à 10 kHz et la puissance de pointe de l'émission représente alors quelques watts.

L'élaboration d'hétérojonctions anisotropes a permis d'améliorer notablement les caractéristiques de fonctionnement des lasers à semiconducteurs et en premier lieu d'abaisser grandement la valeur de seuil de la densité de courant en régime continu à la température ordinaire.

Jusqu'à présent il n'a été question que de jonctions $p - n$ formées par une distribution appropriée des impuretés de types p et n dans un monocristal donné. Dans ces jonctions, appelées aussi homojonctions, les propriétés intrinsèques du semiconducteur sont les mêmes de part et d'autre de la jonction. Mais si l'on assure la croissance d'une couche épitaxiale d'un semiconducteur sur un substrat d'un autre semiconducteur, on obtient ce qu'on a convenu d'appeler une hétérojonction. Bien entendu, la perfection monocristalline du cristal qu'on a fait croître sur le substrat ne sera satisfaisante que si les paramètres du réseau des deux semiconducteurs sont presque identiques. On y arrive à l'aide de substitutions isopériodiques des éléments chimiques dans un composé donné. C'est ainsi qu'on a réalisé les paires de semiconducteurs appropriés GaAs — $Al_xGa_{1-x}As$, GaAs — $GaAs_xP_{1-x}$, CdTe — CdSe, etc. Par un dopage convenable avec des don-

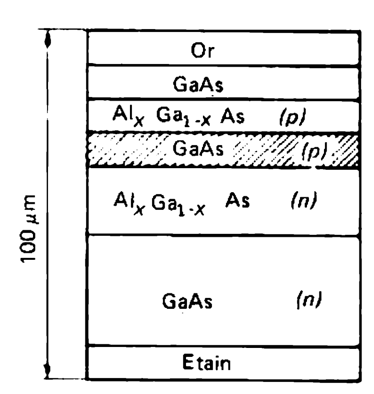


Fig. 25.5. Représentation schématique de la coupe d'une diode à semiconducteur à double hétérojonction. La zone active est hachurée.

neurs et des accepteurs on arrive à fabriquer des diodes à hétérojonctions. Le schéma d'une diode laser à double hétérojonction est représenté sur la figure 25.5.

Pour que les hétérostructures soient aussi parfaites que possible il faut que les matériaux semiconducteurs qui les composent possèdent la même structure cristalline et des paramètres de réseau identiques. Dans le cas des composés GaAs et AlAs les solutions solides $Al_xGa_{1-x}As$ résultant de la substitution de l'aluminium par le gallium ou du gallium par l'aluminium peuvent avoir les mêmes paramètres du réseau, de sorte que l'hétérostructure ne présentera aucun des défauts de structure dus à l'inadéquation des paramètres de réseau.

Dans les hétérostructures la jonction $p - n$ est particulièrement abrupte, les porteurs injectés ne s'échappent pas par diffusion et s'accumulent dans la zone étroite de la jonction. De ce fait la valeur de seuil de la densité du courant d'injection se trouve abaissée. D'autre part, comme l'indice de réfraction du composé ternaire AlGaAs est notablement plus petit que celui du composé binaire GaAs, l'hétérostructure se comporte en guide d'onde où se concentre l'émission, sans pénétrer dans les régions absorbantes où le courant d'injection ne pénètre pas. Tout cela, associé au montage de la diode sur un support de grande conductibilité thermique, permet de réduire, à la température ordinaire, de plus de 100 fois le seuil de la densité de courant, qui ne représente plus que plusieurs centaines d'ampères par cm^2. On arrive à assurer ainsi un fonctionnement stable des lasers à semiconducteurs en régime d'émission continu, débitant une puissance de 100 mW à la température ordinaire, ce qui a notablement élargi leurs possibilités d'application. Le principal domaine de leur application est représenté par les télécommunications par câbles à fibres optiques.

L'idée de l'utilisation des hétérostructures dans les lasers à injection a été avancée, en 1963, par J. Alférov, qui l'a mise en pratique en 1968.

La gamme des longueurs d'onde de l'émission des lasers à semiconducteurs dépend, conformément à la relation (24.14), de la largeur de la bande interdite. L'arséniure de gallium ($E_g \approx 1,5$ eV) émet sur une longueur d'onde de 0,84 μm. Les solutions solides de semiconducteurs ayant des E_g différents permettent de couvrir toute une gamme de longueurs d'onde. Par exemple, selon la composition de la solution solide AlGaAs, la longueur d'onde de l'émission varie de 0,63 à 0,90 μm ; le système AlGaSb permet d'émettre sur des longueurs d'onde comprises entre 1,20 et 1,80 μm, le système GaInAs, sur des longueurs d'onde comprises entre 0,9 et 3,4 μm, etc. Dans certains systèmes de solutions solides tels que $Pb_xSn_{1-x}Se$, $Cd_xHg_{1-x}Te$, la largeur de la bande interdite passe par zéro pour une certaine composition. Cela permet d'élaborer des lasers émettant sur une longueur d'onde de 30 à 40 μm. Dans ce dernier cas, pour éviter le peuplement de la bande de conduction par excitation thermique, on doit maintenir le cristal à très basse température.

La longueur d'onde des diodes lasers peut varier dans de larges limites. A la différence des autres types de lasers, la longueur d'onde de l'émission est déterminée non par des transitions entre des niveaux discrets des atomes ou des molécules, mais par des transitions entre des bandes d'états permis des semiconducteurs et dépend de nombreux facteurs exerçant une influence sur sa structure de bande, tels que la pression, la température, le champ magnétique. La sélection d'un mode d'émission est facilitée par le grand intervalle spectral entre modes résultant des petites dimensions du milieu actif du laser (cf. formule (10.21)). Généralement la distance entre deux modes voisins est égale à 0,5-3 cm^{-1}. La largeur spectrale d'un mode est d'environ 10^{-4} à 10^{-3} cm^{-1}, ce qui est dû à l'instabilité de la température et du courant d'injection.

Pour rendre un laser à semiconducteur continûment accordable, on utilise surtout la variation de la pression et de la température.

Dans le cas de lasers à base de composés ternaires du plomb tels que $Pb_{1-x}Sn_xTe$ et $Pb_{1-x}Sn_xSe$, l'application d'une compression triaxiale, réalisée par le procédé hydrostatique, fait varier le paramètre du réseau cristallin et partant diminue la largeur de la bande interdite. En conséquence, la longueur d'onde de l'émission laser augmente. Cette variation est assez importante. Dans la gamme des pressions réalisables comprises entre 0 et 15 kbars, la variation peut atteindre 1000 cm^{-1}. Citons, par exemple, une diode laser à PbSe dont la longueur d'onde de l'émission passe de 8,5 à 22 μm par application d'une pression de 14 kbars. L'avantage du procédé d'accord par application d'une pression hydrostatique réside en ce que celle-ci n'affecte ni la valeur du courant de seuil, ni les conditions d'auto-excitation du laser. Parmi les inconvénients, signalons que la réalisation technique du procédé est assez compliquée et que l'accord est inertiel.

Un autre procédé d'accord consiste à abaisser la température depuis une température d'émission aussi grande que possible jusqu'à la température de l'hélium liquide. Cette méthode largement utilisée permet une gamme d'accord de 100 à 200 cm^{-1}. L'inconvénient de cette méthode est la variation essentiellement non linéaire de la longueur d'onde en fonction de la température. D'autre part, on a vu ci-dessus qu'une variation de température de la diode modifie grandement la valeur de seuil de l'auto-excitation du laser. Disposant d'équipements cryogéniques autonomes à cycle fermé, ce procédé de variation de la longueur d'onde d'émission des diodes lasers est techniquement assez commode. Bien entendu, on peut combiner l'accord de la longueur d'onde d'une diode laser par variation de la température et de la pression, ce qui étend la gamme d'accordabilité.

Un accord fin et pratiquement dénué d'inertie est réalisé automatiquement lorsqu'on fait passer une impulsion du courant d'injection à travers une jonction $p - n$, puisque celle-ci s'échauffe par effet Joule. L'accord dû au passage du courant d'injection est quasi continu (fig. 25.6), car le déplacement de la bande d'amplification s'accompagne d'un déplacement des fréquences des modes spectraux du laser par suite de la variation thermique de l'indice de réfraction du milieu actif. Comme ces processus évoluent

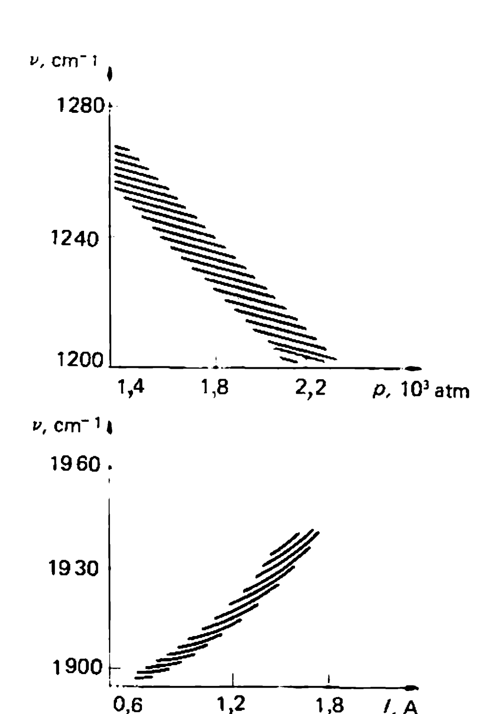


Fig. 25.6. Courbes de changement d'accord des diodes lasers à semiconducteurs, à bandes interdites étroites: en haut, changement d'accord d'un laser à PbSe par la presion appliquée ; en bas, changement d'accord d'un laser à PbTe par le courant qui le traverse.

avec des vitesses différentes, l'accord n'est pas continu et s'effectue suivant des segments isolés des courbes d'accord continu des modes du laser déterminé par la variation de l'indice de réfraction. La gamme d'accord assurée par le courant d'injection ne représente généralement que 0,5 à 3 cm^{-1}.

Un procédé commode de balayage de la fréquence laser consiste à superposer à un courant d'injection continu inférieur au courant de seuil une composante alternative de forme et de fréquence données. Le taux maximal d'accord par le courant d'injection est déterminé par l'inertie thermique du laser et peut atteindre 10^4 $cm^{-1} \cdot s^{-1}$. L'accord du laser à une longueur d'onde donnée et le maintien stationnaire de celle-ci impliquent une grande stabilité de la température et du courant d'injection.

Le principal domaine d'application des diodes lasers accordables est la spectroscopie à haute résolution et la détection de traces d'impuretés dans les liquides et les gaz.

Indiquons pour conclure que le pompage par faisceau électronique des semiconducteurs permet d'obtenir des émissions dans une large gamme de longueurs d'onde, notamment dans la gamme des courtes longueurs d'onde. L'inversion de population résulte de la création par avalanche de paires électron-trou secondaires, tertiaires, etc., dans le cristal semiconducteur soumis au bombardement électronique avec des énergies allant des dizaines à des centaines de kiloélectrons-volts. Le cristal n'a pas besoin de posséder une haute conductibilité électrique ni de jonction $p - n$. Le pompage par faisceau électronique peut donc s'appliquer aux semiconducteurs à grande largeur de bande interdite. Ces lasers possèdent d'importantes puissances de sortie (jusqu'à 10^6 W en impulsion) en raison de la possibilité d'assurer le pompage de volumes qui sont grands devant celui des lasers à injection. Les exemples les plus représentatifs des lasers à injection par faisceau électronique sont les lasers à CdSe, CdS, ZnSe, ZnS qui assurent des émissions sur les longueurs d'onde 0,69 ; 0,49 ; 0,46 ; 0,33 μm respectivement.

Les premiers lasers à pompage par bombardement électronique ont été réalisés en 1964 sous la direction de N. Bassov.

Vingt-sixième leçon. LASERS À ÉLECTRONS LIBRES

Génération de rayonnements UHF par les faisceaux d'électrons. Longueur d'onde du rayonnement émis et conditions de synchronisme pour les faisceaux d'électrons ultrarelativistes. Amplification de l'émission d'électrons relativistes dans l'ondulateur. Lasers à électrons libres à ondulateur.

L'étude des principes physiques de l'électronique quantique et des différents types de lasers montre que c'est la mise en œuvre de l'effet de l'émission stimulée par des systèmes à niveaux d'énergie discrets (ou à bandes d'énergie discrètes), donc par des systèmes essentiellement quantiques, qui

a permis de couvrir par une seule méthode de génération une gamme spectrale très étendue depuis les ondes radioélectriques jusqu'à l'ultraviolet lointain. Il faut faire à ce propos une remarque importante. Malgré l'existence d'amplificateurs et de générateurs quantiques (masers) la génération d'oscillations électromagnétiques dans la gamme UHF se fonde surtout sur l'interaction d'un faisceau d'électrons libres avec des guides d'ondes et des cavités résonnantes, et utilise donc les procédés de la physique classique.

La nature de l'effet d'émission stimulée n'est pas nécessairement quantique et cet effet peut donc se manifester aussi dans des systèmes classiques. On peut donc envisager la question de l'utilisation des méthodes électroniques de génération d'ondes UHF dans la gamme optique. De même que les systèmes essentiellement quantiques sont capables de générer des oscillations de toutes fréquences comprises entre les UHF radioélectriques et l'ultraviolet lointain, on peut espérer que l'émission stimulée par des objets classiques tels les électrons libres pourrait être utilisée pour générer des oscillations électromagnétiques de toutes fréquences comprises entre les fréquences radioélectriques et les fréquences optiques.

Conformément à la signification du terme « laser », il serait normal d'appeler laser à électrons libres ou laser électronique les générateurs d'ondes électromagnétiques utilisant l'émission stimulée de lumière par des faisceaux d'électrons.

En électronique UHF classique, les dimensions des oscillateurs fonctionnant sous vide ou de leurs parties essentielles sont comparables à la longueur d'onde du rayonnement généré. La région où, par interaction des électrons libres avec un champ d'émission hyperfréquence, l'énergie cinétique des électrons est transformée en énergie du champ d'émission, fait partie du système oscillant d'une cavité résonnante électrodynamique qui possède en général plusieurs fréquences propres. Le temps de transit des électrons à travers la région d'interaction, ou plus exactement le temps de transit à travers certains éléments du résonateur, doit être du même ordre de grandeur que la période des oscillations générées.

Dans tous les oscillateurs à vide de l'électronique UHF il est indispensable d'assurer le synchronisme entre les déplacements des électrons et l'onde électromagnétique qui capte leur énergie. Lors de l'interaction des électrons avec le champ haute fréquence de l'onde, il se forme dans le faisceau électronique des paquets d'électrons. Lors de leur propagation ultérieure ces paquets d'électrons cèdent une partie de leur énergie au champ d'émission grâce à leur interaction avec la composante de ce champ qui satisfait à la condition de synchronisme.

Le groupement d'électrons en paquets est réalisé dans tous les dispositifs pour hyperfréquences, quoique les procédés de groupement y soient différents. La formation de paquets d'électrons est particulièrement évidente

dans les tubes à ondes progressives, où un flux d'électrons qui se déplace rectilignement le long de la direction de propagation d'une onde électromagnétique progressive subit une interaction de longue durée avec le champ de cette onde. Tant que la vitesse du mouvement de translation des électrons est notablement inférieure aux vitesses où se manifestent les effets relativistes, le synchronisme de l'interaction est assuré par un ralentissement de la vitesse de propagation de l'onde. Le dispositif le plus simple permettant de décroître la vitesse de l'onde est une hélice en fil conducteur. Le long de ce conducteur l'onde se propage à peu de chose près à la vitesse de la lumière c, mais suivant l'axe z de l'hélice la vitesse de phase de l'onde est approximativement égale à $v_z \approx cd/2\pi a$, où a est le rayon de l'hélice et d son pas. Les électrons se déplaçant le long de l'axe à une vitesse proche de v_z se groupent en paquets sous l'action des accélérations et décélérations qu'ils subissent de la part de l'onde sur différentes parties de leurs trajets.

La figure 26.1 illustre le cas le plus simple où la composante longitudinale du champ électrique de l'onde progressive a pour expression $E_z = E_0 \times \times \sin(\omega t - \omega z/v_z)$. Sur cette figure, les flèches désignent les forces s'exerçant sur les électrons. On voit que les électrons se trouvant sur les parties AB et BC de leurs trajectoires rectilignes doivent chercher à se rassembler dans le plan B, ceux qui se trouvent sur les parties CD et DE doivent se rassembler dans le plan D, etc. Il s'ensuit que les plans A, C, E, etc., ne doivent contenir aucun électron. Dans les plans B, D, etc., distants de la période spatiale de l'onde $E_z(t, z)$ se forment donc des paquets d'électrons.

Si le synchronisme est parfait, i.e. si la vitesse de déplacement des électrons le long de l'axe z est égale à la vitesse de phase de l'onde dans le sens de déplacement des électrons ($v = v_z$), les électrons sont immobiles par rapport au champ de l'onde progressive et il n'y a donc aucune interaction entre l'onde et les électrons. Lorsque $v > v_z$ les paquets d'électrons devancent l'onde, ce qui correspond sur la figure 26.1 à leur mouvement de gauche à droite, i.e. à l'encontre de la force décélératrice. Dans ces conditions l'énergie cinétique des électrons est transformée en énergie du champ UHF, ce qui signifie que ce dernier est amplifié. Comme cette amplification

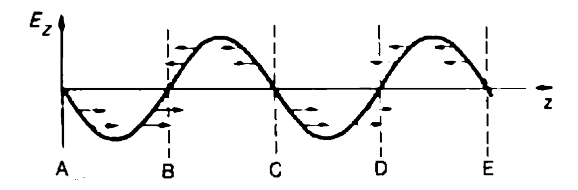


Fig. 26.1. Groupement des électrons par le champ électrique de la composante longitudinale d'une onde progressive ralentie. La distribution $E_z(z)$ correspond à $t = 0$.

est cohérente, l'application d'une réaction convenable permet d'obtenir une émission. Comme toujours l'émission débute sous l'action de fluctuations, dont les champs d'émission assurent le groupement de plus en plus compact de paquets d'électrons qui, en retour, émettent un rayonnement électromagnétique. En termes d'électronique quantique il s'agit là d'une émission stimulée.

Un tube à onde progressive est un système à très large bande. Dans le cas considéré, la période spatiale de groupement en paquets est égale à $\Lambda = Tv_z$, où T est la période temporelle des oscillations. Dans le cas d'une ligne à retard en forme d'hélice $v_z \approx cd/2\pi a$ et en première approximation v_z ne dépend pas de la fréquence du champ, ce qui signifie qu'il n'y a pas de dispersion. Dans cette approximation les conditions de synchronisation qui déterminent la fréquence de vibration du champ amplifié ne dépendent que de la vitesse des électrons, i.e. de la différence de potentiel du champ électrostatique qui accélère les électrons ; il s'ensuit que la fréquence ne dépend pas d'une quelconque période spatiale propre d'une ligne à retard, cette dernière pouvant être considérée alors comme un système homogène. Etant des dispositifs à large bande, les tubes à onde progressive sont généralement utilisés pour l'amplification de faibles signaux UHF. Les dispositifs servant à la réalisation d'oscillateurs ont des bandes de fréquence notablement plus étroites ; ils présentent une structure périodique spatialement non homogène ayant des résonances propres, autrement dit ils présentent une structure essentiellement dispersive.

Soit un électron animé d'une vitesse V qui traverse un système spatialement périodique de période spatiale Λ. L'électron est alors soumis à une force périodique de période temporelle Λ/V. Cela signifie que l'accélération de l'électron varie périodiquement avec la fréquence V/Λ, ce qui implique un mouvement le long d'une trajectoire spatialement périodique. En décrivant une telle trajectoire l'électron émet un rayonnement. Si sa vitesse est notablement inférieure aux vitesses relativistes, la fréquence de rayonnement est égale à la fréquence V/Λ du mouvement périodique. Dans le cas de périodes spatiales Λ macroscopiques, la longueur d'onde du rayonnement émis par l'électron

$$\lambda = c\Lambda/V \tag{26.1}$$

correspond à la gamme radioélectrique dans le cas non relativiste.

La situation change à mesure qu'augmente la vitesse de l'électron. Par suite de l'effet Doppler relativiste, la longueur d'onde du rayonnement émis diminue fortement par rapport aux dimensions caractéristiques du système rayonnant. Pour une vitesse proche de celle de la lumière ($V \lessdot c$), en raison de la diminution relativiste des longueurs, on aura $\Lambda' = \Lambda(1 - V^2/c^2)^{1/2}$; dans ces conditions la fréquence des actions périodiques auxquelles est sou-

mis l'électron dans le système de coordonnées lié à ce dernier se trouve accrue jusqu'à la valeur $\gamma V/\Lambda$, où le facteur relativiste $\gamma = (1 - V^2/c^2)^{-1/2}$. Dans le système de coordonnées lié au laboratoire, la transformation de Lorentz inverse conduit à une augmentation de la fréquence d'émission dans le sens du déplacement de l'électron, due à l'effet Doppler relativiste, de $\gamma(1 + V/c)$ fois. Pour des électrons ultrarelativistes ($V \approx c$) $1 + V/c \approx 2$, et par conséquent la longueur d'onde du bremsstrahlung évaluée dans le système de coordonnées lié au laboratoire diminue fortement par rapport à la période spatiale Λ de non-homogénéité :

$$\lambda \approx \Lambda/2\gamma^2. \qquad (26.2)$$

Pour évaluer la valeur de γ il est commode d'utiliser la relation relativiste bien connue entre l'énergie $W = mc^2$ et la masse d'une particule de haute énergie $m = \gamma m_0$, m_0 étant sa masse au repos. En physique des accélérateurs d'électrons, on évalue l'énergie des électrons en électrons-volts en s'appuyant sur la relation $W = eU$, e étant la charge de l'électron et U la différence de potentiel du champ électrostatique qu'il faut appliquer pour que l'électron acquiert la vitesse V. On écrira donc

$$\gamma = eU/m_0c^2. \qquad (26.3)$$

On sait que l'énergie de repos m_0c^2 de l'électron est égale à 511 keV. Cela signifie que lorsque $eU = 50$ MeV, le facteur relativiste $\gamma \approx 10^2$, de sorte qu'avec un paramètre macroscopique $\Lambda = 1$ cm la longueur d'onde λ du rayonnement émis se situe dans le spectre visible.

Par conséquent, pour créer un laser à électrons libres on doit tabler sur des situations essentiellement relativistes pour lesquelles

$$\gamma = (1 - V^2/c^2)^{-1/2} \gg 1 \quad \text{ou} \quad |V - c| \ll 1. \qquad (26.4)$$

Le rôle des effets relativistes ne se limite nullement à une forte augmentation de la fréquence d'émission des électrons. En effet, lorsque les électrons sont animés de vitesses relativistes, le synchronisme des faisceaux électronique et lumineux est automatiquement assuré. Les accélérateurs d'électrons génèrent des faisceaux d'électrons de très grande énergie, fonctionnant généralement en régime d'impulsions. Si au cours du temps de transit à travers l'espace d'interaction des électrons avec l'onde lumineuse l'écart entre celle-ci et le paquet d'électrons est inférieur à une longueur d'onde, on peut négliger ce défaut de synchronisme.

Il existe cependant des dispositifs fondés sur des effets faiblement relativistes qui ressemblent aux masers à résonance cyclotron élaborés par A. Gaponov-Grékhov, et qui présentent d'excellentes potentialités en tant que générateurs de rayonnement UHF de grande puissance. Afin d'obtenir une grande puissance pour une fréquence de génération relativement basse

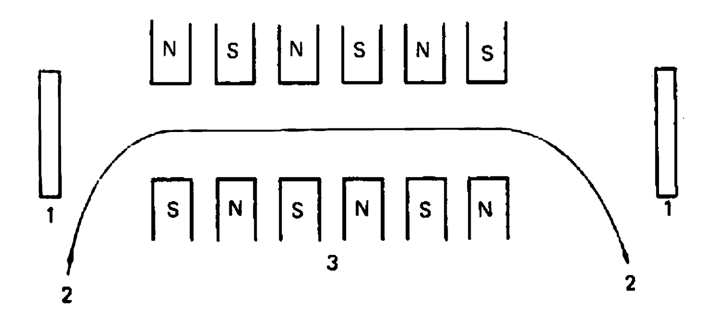


Fig. 26.2. Schéma de constitution d'un laser à électrons libres : *1* — miroirs, *2* — faisceau électronique, *3* — ondulateur magnétique ; *N* et *S* — pôles Nord et Sud des aimants de l'ondulateur.

(UHF ou l'infrarouge lointain), on utilise généralement des faisceaux d'électrons de forte intensité de courant et d'énergie relativement faible. Pour que l'émission ait lieu dans la gamme optique, il faut utiliser des faisceaux d'électrons de grande énergie (cf. formule (26.2)) qui de ce fait présentent une densité électronique relativement faible. Dans le cas de courants forts, les effets collectifs jouent un rôle notable dans la formation du plasma du faisceau ; le rôle que jouent ces effets pour que soient créées les conditions nécessaires à une émission stimulée a été brièvement esquissé au début de cette leçon. Dans le cas de courants faibles l'interaction des électrons avec le champ s'effectue sur une base individuelle. On effectuera donc l'étude du laser à électrons ultrarelativistes ($\gamma \gg 1$) dans l'approximation monoélectronique *. On présentera à la fin de l'exposé qui suit une justification quantitative de l'approche monoélectronique.

Dans un laser à électrons libres à ondulateur, un paquet d'électrons relativistes (en réalité il s'agit généralement d'une succession de paquets d'électrons courts) traverse une région assez étendue où règne un champ magnétique présentant une périodicité spatiale (fig. 26.2). Le système qui assure cette périodicité spatiale du champ magnétique est appelé ondulateur (en anglais *wiggle*). Les ondulateurs magnétiques créent à proximité de l'axe du faisceau électronique un champ transversal constant dans le temps et présentant une périodicité spatiale à polarisation rectiligne ou circulaire.

Considérons un laser à ondulateur en hélice créant sur son axe un champ magnétique à polarisation circulaire. Dans le cas de la polarisation circulaire d'une onde se propageant le long de l'axe z parallèlement au faisceau électronique, les électrons sont soumis à l'action de champs qui sont

* L'exposé qui suit a été conçu et rédigé en coopération avec M. Fedorov que l'auteur voudrait remercier bien sincèrement ici.

définis par les potentiels vecteurs du champ $\mathbf{A}_1$ de l'ondulateur et du champ $\mathbf{A}_2$ de l'onde électromagnétique :

$$\mathbf{A}_1 = \frac{H}{q}(\mathbf{x}\cos qz + \mathbf{y}\sin qz),$$
$$\mathbf{A}_2 = \frac{Ec}{\omega}\left[\mathbf{x}\cos\left(\frac{\omega}{c}z - \omega t\right) - \mathbf{y}\sin\left(\frac{\omega}{c}z - \omega t\right)\right], \tag{26.5}$$

où $\mathbf{x}$ et $\mathbf{y}$ sont des vecteurs unitaires dirigés le long des axes Ox et Oy qui sont orthogonaux entre eux et par rapport à l'axe Oz ; E est l'intensité du champ électrique ; ω la fréquence de l'onde électromagnétique se propageant le long de l'axe Oz ; $q = 2\pi/\Lambda$ (Λ et H sont la période et l'intensité du champ magnétique de l'ondulateur).

Dans le système de coordonnées se déplaçant avec la vitesse initiale $V \approx c$ des électrons ces potentiels (26.5) s'écrivent sous la forme

$$\mathbf{A}_1' = \frac{H}{q}\left[\mathbf{x}\cos\frac{\Omega}{c}(z' + Vt') + \mathbf{y}\sin\frac{\Omega}{c}(z' + Vt')\right],$$
$$\mathbf{A}_2' = \frac{Ec}{\omega}\left[\mathbf{x}\cos\frac{\omega'}{c}(z' - Vt') - \mathbf{y}\sin\frac{\omega'}{c}(z' - Vt')\right], \tag{26.6}$$

où les grandeurs primées correspondent au référentiel mobile et conformément à (26.3) et (26.4)

$$\omega' = \omega(1 - V/c)^{1/2}(1 + V/c)^{-1/2} \approx \omega/2\gamma, \quad \Omega = cq\gamma.$$

La première formule (26.6) montre que dans le référentiel concomitant le potentiel du champ de l'ondulateur devient proche du potentiel d'une onde plane de fréquence Ω. Cela implique que l'électron relativiste ressent le champ magnétique statique à périodicité spatiale comme une onde électromagnétique de longueur d'onde Λ/γ se propageant à sa rencontre. La condition de résonance $\omega' \approx \Omega$ détermine la fréquence du champ à proximité de laquelle peuvent avoir lieu l'amplification et l'émission par un laser à ondulateur à électrons libres. Dans le référentiel de laboratoire cette condition donne la valeur

$$\omega_0 = 2\gamma^2 cq, \tag{26.7}$$

résultat parfaitement équivalent à la formule (26.2).

L'équation du mouvement de l'électron dans le référentiel concomitant peut s'écrire (cf. L. Landau, E. Lifchitz. *Théorie des champs*, Mir)

$$\frac{d}{dt'}\left(\mathbf{p}' + \frac{e}{c}\mathbf{A}'\right) = \frac{e}{c}\mathbf{z}\left(\mathbf{V}'\frac{\partial \mathbf{A}'}{\partial z'}\right), \tag{26.8}$$

où $\mathbf{z}$ est le vecteur unité dirigé suivant l'axe Ox, $\mathbf{p}'$ et $\mathbf{V}'$ sont l'impulsion

et la vitesse de l'électron ; $\mathbf{A}' = \mathbf{A}_1' + \mathbf{A}_2'$, compte tenu de ce que $\mathbf{A}'$ ne dépend pas des coordonnées transversales. En conséquence on trouve que la première intégrale de l'équation (26.8) définissant le mouvement de l'électron dans le plan xy s'écrit comme suit :

$$\mathbf{p}_\perp' = -\frac{e}{c}\mathbf{A}'. \tag{26.9}$$

En posant que le mouvement de l'électron dans de référentiel concomitant n'est pas relativiste, l'intégrale (26.9) détermine aussitôt la vitesse de l'électron dans le plan transversal :

$$V_x' = -\frac{e}{m_0 c}A_x', \quad V_y' = -\frac{e}{m_0 c}A_y'. \tag{26.10}$$

Selon les équations (26.6) le potentiel vecteur **A** n'a pas de composante longitudinale A_z, ce qui correspond à un enroulement du solénoïde comportant deux hélices décalées de π créant le champ de l'ondulateur, ainsi qu'à la transversalité de l'onde électromagnétique se propageant dans l'ondulateur. Dans ces conditions l'équation définissant la composante longitudinale p_z' de l'impulsion de l'électron doit s'écrire, selon (26.8), sous la forme

$$\frac{dp_z'}{dt'} = \frac{e}{c}\left(V_x'\frac{\partial A_x'}{\partial z'} + V_y'\frac{\partial A_y'}{\partial z'}\right). \tag{26.11}$$

En substituant dans (26.11) les expressions (26.10) des composantes V_x' et V_y' de la vitesse, on trouve

$$\frac{dp_z'}{dt'} = -\frac{e^2}{2m_0c^2}\frac{\partial}{\partial z'}(A_x'^2 + A_y'^2). \tag{26.12}$$

La somme des carrés des composantes transversales du potentiel vecteur résultant $\mathbf{A}'$ est égale à

$$A_x'^2 + A_y'^2 = \frac{H^2}{q^2} + \frac{c^2E^2}{\omega^2} + 2\frac{cEH}{q\omega}\cos\left[\frac{\Omega + \omega'}{c}z' + (\Omega - \omega')t'\right]. \tag{26.13}$$

En portant cette expression dans (26.11) et en remarquant que $p_z' = m_0 dz'/dt'$ dans le cas du mouvement non relativiste dans le référentiel concomitant, on obtient l'équation de la coordonnée longitudinale z' de l'électron dans ce référentiel :

$$\frac{d^2z'}{dt'^2} = \frac{e^2}{m_0^2c^2}\frac{eH}{q\omega}(\Omega + \omega')\sin\left[\frac{\Omega + \omega'}{c}z' + (\Omega - \omega')t'\right]. \tag{26.14}$$

L'argument du sinus détermine la phase du mouvement de l'électron dans les champs superposés de l'ondulateur et de l'onde qui s'y propage :

$$\varphi \equiv \frac{\Omega + \omega'}{c} z' + (\Omega - \omega')t'. \qquad (26.15)$$

En appliquant la transformation inverse de Lorentz, on trouve la relation entre la phase φ, la coordonnée longitudinale z du mouvement de l'électron et le temps t dans le référentiel de laboratoire :

$$\varphi = \left(\frac{\omega}{c} + q\right) z - \omega t. \qquad (26.16)$$

Près de la résonance, i.e. pour $\omega' \approx \Omega$, on a

$$\frac{d^2\varphi}{dt^2} = 4\,\frac{e^2\Omega^2}{m_0^2 c^3}\,\frac{EH}{q\omega}\sin\varphi. \qquad (26.17)$$

En repassant dans le référentiel de laboratoire et en portant dans (26.17) les valeurs $\Omega = cq\gamma$ et $\omega \approx \omega_0 = 2\gamma^2 cq$, on obtient l'équation

$$\frac{d^2\varphi}{dt^2} = 2\,\frac{e^2 EH}{\gamma^2 m_0^2 c^2}\sin\varphi. \qquad (26.18)$$

L'équation du mouvement de l'électron dans l'ondulateur se ramène à l'équation donnant la phase du mouvement du pendule simple classique. Ce résultat témoigne de l'existence d'une profonde analogie entre le laser à électrons libres et les dispositifs électroniques UHF qui, dans l'approximation d'un champ donné, sont également décrits par des équations de ce type.

Pour poursuivre notre étude il faut se fixer des conditions initiales. A l'instant où l'électron pénètre dans l'ondulateur, la phase a une valeur arbitraire φ_0. Pour trouver la seconde condition initiale, il suffit de différentier l'expression (26.16) définissant la phase. Pour $t = 0$, on trouve ainsi

$$\varphi = \varphi_0,$$

$$\frac{d\varphi}{dt} = \dot{\varphi}_0 = \left(\frac{\omega}{c} + q\right) V - \omega \approx cq - \frac{\omega}{2\gamma^2} = -\frac{\omega - \omega_0}{2\gamma^2}. \qquad (26.19)$$

On notera que le taux initial de variation de la phase est proportionnel à l'écart entre la fréquence d'émission et la fréquence de résonance.

L'équation (26.18) avec les conditions initiales (26.19) définit complètement le mouvement de l'électron dans les champs de l'onde et de l'ondulateur et permet de déterminer les principales caractéristiques du laser.

Calculons l'énergie rayonnée par l'électron dans l'ondulateur au cours d'un passage. L'énergie rayonnée par unité de temps est définie comme le travail fourni par le champ de l'onde à l'électron mais changé de signe :

$$\frac{d}{dt} F(t) = -c\mathbf{E}\mathbf{V}, \qquad (26.20)$$

où par définition $\mathbf{E} = -c^{-1}\partial \mathbf{A}_2/\partial t$. Cette équation permet d'établir une relation simple entre l'énergie rayonnée F et la phase φ.

En effet, compte tenu de (26.9), la vitesse transversale de l'électron dans le référentiel de laboratoire est égale à

$$\mathbf{V}_\perp = \frac{1}{\gamma}\mathbf{V}'_\perp = -\frac{e}{\gamma m_0 c}\mathbf{A}' = -\frac{e}{\gamma m_0 c}\mathbf{A} = -\frac{e}{\gamma m_0 c}(\mathbf{A}_1 + \mathbf{A}_2). \tag{26.21}$$

En portant (26.6) dans (26.21), puis (26.21) dans (26.20), on trouve après quelques réarrangements

$$\frac{d}{dt}F = \frac{e^2}{\gamma m_0 c^2}\frac{cEH}{q}\sin\varphi. \tag{26.22}$$

Or $\sin\varphi$ est lié à $d^2\varphi/dt^2$ par l'équation du pendule (26.18), ce qui permet d'exprimer la relation cherchée sous une forme assez simple :

$$\frac{d}{dt}F = -\frac{\gamma m_0 c^2}{cq}\frac{d^2\varphi}{dt^2} = -\frac{W}{cq}\frac{d^2\varphi}{dt^2}. \tag{26.23}$$

Dans cette expression $W = \gamma m_0 c^2$ est l'énergie totale de l'électron relativiste.

L'intégration de cette équation avec la prise en compte des conditions initiales (26.19) pour $d\varphi/dt$, en posant tout naturellement que $F(0) = 0$, fournit le résultat suivant :

$$F = \left(\frac{\omega_0 - \omega}{2\Omega} - \frac{1}{cq}\dot{\varphi}\right)W. \tag{26.24}$$

Utilisons encore la première intégrale de l'équation du mouvement du pendule qui est bien connue et qui exprime la loi de la conservation de l'énergie: la somme des énergies cinétique et potentielle du pendule à un instant quelconque est égale à leur somme à l'instant initial $t = 0$. Avec nos notations et compte tenu des conditions initiales (26.19), cela implique que

$$(\dot{\varphi})^2 + \frac{4e^2c^2EH}{W^2}(\cos\varphi - \cos\varphi_0) = \text{const} = \left(\frac{\omega - \omega_0}{2\gamma^2}\right)^2. \tag{26.25}$$

Remarquons que l'énergie totale du pendule dépend aussi bien de sa phase initiale φ_0 que de la différence $\omega - \omega_0$. Dans l'approximation des signaux faibles

$$2L^2e^2EH/W^2 \ll 1, \tag{26.26}$$

où on a pris en compte que le temps de transit de l'électron dans l'ondulateur de longueur L est égal à L/c, ce qui signifie que pour $E \to 0$ notre système analogue au pendule exécute non pas un mouvement oscillatoire, mais un mouvement de rotation par rapport à une certaine position d'équilibre en exécutant ses rotations avec la fréquence circulaire $(\omega - \omega_0)/2\gamma^2$. Cela signifie que dans l'approximation des signaux faibles on peut résoudre

l'équation (26.25) par la méthode d'itération par rapport au terme $4e^2c^2EH(\cos\varphi - \cos\varphi_0)/W^2$.

En omettant des calculs longs et laborieux, on se contentera de signaler que dans l'approximation d'ordre zéro l'énergie rayonnée (26.24) est égale à zéro. En l'absence du champ de l'onde électromagnétique, il n'y a ni émission ni absorption. Dans l'approximation suivante, d'ordre un, on trouve que l'énergie rayonnée est proportionnelle à $\cos\varphi_0$ ou à $\sin\varphi_0$. Or dans les accélérateurs d'électrons de hautes énergies, le faisceau électronique se compose de paquets d'électrons de durée finie dont l'étendue longitudinale ($\geqslant 1$ mm) est notablement plus grande que la longueur d'onde de la lumière. Il s'ensuit que l'énergie rayonnée doit être moyennée sur la phase initiale φ_0.

En prenant cette moyenne au premier ordre en E, on trouve que l'énergie rayonnée est nulle. Ce n'est qu'au second ordre d'itération que l'équation (26.25) fournit un taux moyen de variation de phase différent de zéro, ce qui permet de calculer à l'aide de (26.24) l'énergie moyenne $\overline{F}$ rayonnée par l'électron par passage. Cette quantité est tout naturellement liée à la valeur du facteur d'amplification en puissance $1 + G$ de l'émission par passage :

$$G = \frac{4\pi}{E^2} N_e\overline{F}, \tag{26.27}$$

où N_e est la densité électronique. A la suite de calculs assez laborieux on trouve

$$G = \frac{4\pi^{3/2}N_e e^4 H^2 L^3}{m_0^3 c^{9/2}\omega_0^{3/2}\Lambda^{1/2}} \frac{d}{du}\frac{\sin^2 u}{u^2}, \tag{26.28}$$

où l'on a utilisé les notations $u = 4\pi n(\omega - \omega_0)/\omega_0$, $n = L/\Lambda$ — le nombre de périodes de l'ondulateur, L — la longueur de l'ondulateur.

Le facteur $\dfrac{d}{du}\dfrac{\sin^2 u}{u^2}$ détermine la dispersion $G(\omega)$. L'amplification a lieu ($G > 0$) lorsque $u < 0$ ou $\omega < \omega_0$. Le facteur d'amplification maximal correspond à $|u| = 1$. Cette condition détermine la largeur de la bande d'amplification :

$$\Delta\omega = \omega/4\pi n, \tag{26.29}$$

qui résulte de la longueur finie $L = n\Lambda$ de l'ondulateur et qui est analogue à la largeur de raie homogène, dans le sens usuel de ce dernier terme. On notera que la formule (26.28) a été établie pour un faisceau d'électrons monoénergétique. Dans les conditions réelles la situation est différente et si la dispersion $\Delta W/W$ de l'énergie des électrons du faisceau est assez importante, on se trouve en présence d'un élargissement non homogène qui peut être plus important que l'élargissement homogène.

Si l'inégalité $\Delta W/W > 1/4\pi n$ est vérifiée, l'élargissement non homogène est supérieur à l'élargissement homogène et on doit alors calculer la moyen-

ne de (26.28) sur la fonction de distribution $f(W)$ de l'énergie des électrons. Dans le cas d'un élargissement non homogène important, on peut remplacer en approximation le facteur $\frac{\sin^2 u}{u^2}$ par la fonction delta : $\frac{\sin^2 u}{u^2} = \pi\delta(\omega)$. Dans ce cas, après avoir calculé la moyenne sur W, on obtiendra

$$G = \frac{e^4 H^2 N_e L \Lambda^{5/2}}{4\pi^{1/2} m_0 c^{3/2} \omega^{1/2}} \left.\frac{df(W)}{dW}\right|_{W=W_0}. \tag{26.30}$$

On a utilisé ici la notation $W_0 = m_0 c^2(\omega/2qc)^{1/2}$ et on a admis que la fonction de distribution $f(W)$ est normalisée par la condition $\int f(W)dW = 1$, ce qui entraîne que $(df/dW)_{\max} \approx 1/(\Delta W)^2$. Le facteur d'amplification est maximal lorsque $W_0 - \overline{W} < 0$, $|W_0 - \overline{W}| \approx \Delta W$, où $\overline{W}$ est l'énergie moyenne des électrons du faisceau. Il s'ensuit que la largeur de la bande d'amplification est alors égale à

$$\Delta\omega = (\Delta W/W)\omega. \tag{26.31}$$

La formule (26.30) qui est valable pour $\Delta W/W > 1/4\pi n$ permet d'établir une analogie plus tangible avec les lasers fondés sur les transitions entre niveaux discrets des atomes et des molécules. En effet, pour que l'absorption soit négative ($G > 0$), il faut que $(df/dW)|_{W=W_0} > 0$. Cela signifie que l'amplification est assurée par les électrons correspondant à la partie croissante de la fonction de distribution de l'énergie des électrons, tandis que l'absorption correspond à la partie décroissante de cette fonction. Autrement dit, l'amplification ne peut avoir lieu qu'à la condition qu'à proximité de W_0 le nombre d'électrons de grandes énergies est supérieur au nombre d'électrons de plus petites énergies. Or c'est la condition d'inversion de population des niveaux appliquée à un système à spectre continu. Dans le cas d'un élargissement non homogène ($\Delta W/W > 1/4\pi n$) la condition de l'absorption négative se ramène à la condition usuelle d'inversion de population à proximité de l'énergie W_0 dépendant de la fréquence ω et de la période $\Lambda = 2\pi/q$ de l'ondulateur.

Les formules (26.28) et (26.30) ont été établies dans l'approximation monoélectronique. On a déjà mentionné que dans le cas de courants électroniques importants, les effets collectifs dans le plasma du faisceau peuvent jouer un rôle notable. Mais si dans le référentiel lié aux électrons relativistes le produit de l'incrément de la grandeur entraînant l'instabilité du plasma par le temps de transit des électrons à travers l'ondulateur est petit, l'instabilité ne se manifeste pas et on peut négliger les effets collectifs. La valeur maximale de l'incrément déterminant l'instauration de l'instabilité du plasma est déterminée par la fréquence du plasma $\omega_p = (4\pi e^2 \times N_e/m_0)^{1/2}$. La condition pour que l'interaction soit monoélectronique s'exprime par

$\omega_p' t' \ll 1$, où ω_p' et t' sont respectivement la fréquence de plasma et le temps d'interaction dans le référentiel mobile. En appliquant la transformation inverse de Lorentz pour le temps et la coordonnée longitudinale, on trouve la condition $\gamma^{-3/2} c^{-1} L(4\pi e^2 N_e/m_0)^{1/2} \ll 1$ qui est toujours largement vérifiée pour les électrons ultrarelativistes.

On a démontré ainsi qu'un faisceau d'électrons relativistes se propageant rectilignement à travers un ondulateur magnétique est susceptible d'amplification, ce qui implique qu'avec une réaction convenable il est susceptible d'émettre un rayonnement dont la longueur d'onde dépend de la période spatiale Λ de l'ondulateur et de la valeur du facteur relativiste γ, i.e. de l'énergie des électrons. L'accord de la fréquence d'émission s'effectue en modifiant l'énergie des électrons. Un laser de ce type pourrait, en principe, fonctionner depuis la gamme des ondes submillimétriques jusqu'à l'ultraviolet lointain. Pour une longueur usuelle des ondulateurs de quelques mètres et pour une période spatiale de 1 à 3 cm, la largeur homogène relative de la raie d'amplification serait égale à 10^{-4}-10^{-3}. En général, comme les faisceaux électroniques ne sont pas monoénergétiques, la largeur de la raie est plus grande.

En réalisant les ondulateurs à l'aide d'enroulements supraconducteurs à double spirale, on crée facilement un champ magnétique à polarisation circulaire ayant une induction de plusieurs kilogauss. Si l'intensité du courant transporté par le faisceau d'électrons est égale à plusieurs ampères ($N_e \approx 5 \cdot 10^{10}$ à 10^{11} cm^{-3}) et si l'énergie des électrons est égale à 20-30 MeV, on obtient dans le proche infrarouge une amplification par passage égale à plusieurs pour cent (de l'ordre de 10 %) et une puissance de pointe de sortie de l'ordre de 10^4 W.

Les accélérateurs d'électrons qu'on utilise pour produire les faisceaux d'électrons fonctionnent généralement en régime d'impulsions. La durée des impulsions du faisceau d'électrons est de l'ordre de 1 μs. Ces impulsions ne sont pas homogènes et se présentent sous forme d'une succession régulière de paquets d'électrons d'une durée beaucoup plus petite (en général de l'ordre de la picoseconde). Dans certains accélérateurs on arrive à produire continûment des paquets d'électrons de ces durées.

Pour constituer le circuit de réaction il faut que l'intervalle de temps entre les paquets d'électrons envoyés régulièrement à l'entrée de l'ondulateur soit multiple du double du temps de propagation de l'émission dans le résonateur. Ce n'est qu'à cette condition que le rayonnement émis par les paquets d'électrons et emmagasiné dans le résonateur à la suite de réflexions successives sur ses miroirs arrive sous forme de paquets d'onde à l'entrée de l'ondulateur en synchronisme avec les paquets d'électrons et peut être amplifié pendant toute la durée d'existence de la succession ininterrompue des paquets d'électrons. L'émission laser se présente ainsi sous la forme

d'impulsions courtes séparées par des intervalles de temps égaux au double du temps de propagation du rayonnement entre les miroirs du résonateur ou multiples de ce temps ; la distance entre les miroirs du résonateur laser est pratiquement égale à la longueur de l'ondulateur.

On notera que ce régime de fonctionnement est tout à fait équivalent au régime de blocage des modes des lasers à colorants (cf. leçon 22) pompés par une succession d'impulsions lasers séparées par un intervalle de temps multiple du temps de propagation de l'émission dans le résonateur du laser.

La non-monochromaticité de l'émission des lasers à électrons libres dépend donc de la durée des paquets d'électrons. Les paquets d'une durée de 3 ps occupent dans l'espace une étendue de 1 mm environ, ce qui se traduit par une largeur du spectre d'émission égale à 10 cm^{-1}. Pour accroître la monochromaticité des lasers à électrons libres il faudrait allonger les paquets d'électrons tout en conservant la valeur de pointe du courant électronique.

Vingt-septième leçon. **Les dix-sept lasers les plus connus**

Descriptions sommaires. Particularités les plus marquantes. Méthodes de production de l'inversion de population.

Dans ce qui précède on a examiné les principaux types de lasers actuellement connus. Dans ce qui suit on présente un résumé de leurs caractéristiques.

Lasers à hélium-néon (leçon 13). L'émission continue utilise les transitions $3s \to 2p$ ($\lambda = 0{,}63\,\mu$m), $2s \to 2p$ ($\lambda = 1{,}15\,\mu$m) et $3s \to 3p$ ($\lambda = 3{,}39\,\mu$m) dans les atomes neutres de néon. L'excitation des niveaux lasers supérieurs du néon résulte du transfert de l'énergie d'excitation acquise par les atomes d'hélium aux atomes de néon dans des conditions de quasi-résonance au cours des chocs inélastiques évoluant avec de faibles pertes d'énergie.

L'état métastable de l'hélium qui transmet par chocs son énergie aux atomes de néon est excité par les électrons au sein du plasma de la décharge luminescente dans le mélange gazeux. Le transfert collisionnel de l'énergie excite efficacement le niveau qu'on cherche à peupler à condition que le taux de transfert soit notablement plus grand que le taux de son dépeuplement :

$$N\sigma v \gg 1/\tau. \tag{13.7}$$

Cette condition est vérifiée dans le mélange d'hélium et de néon lorsque le rapport de leurs pressions partielles est compris entre 1 : 5 et 1 : 15. Pour que l'inversion de population puisse subsister en régime continu, il faut

que le niveau laser inférieur se dépeuple rapidement, autrement dit il faut que la durée de vie effective du niveau supérieur soit plus grande que la durée de vie du niveau inférieur :

$$\tau_2 > \tau_1. \tag{14.8}$$

Dans le laser à hélium-néon les niveaux inférieurs se dépeuplent lors des chocs des atomes contre les parois du tube de décharge.

Dans ce laser les raies d'émission sur 0,63 μm et sur 3,39 μm, qui ont le même niveau du départ (3*s*), se font concurrence.

Laser à argon (leçon 14). Le milieu actif est constitué par les ions Ar^+. L'émission en régime continu utilise les transitions entre des niveaux d'énergies élevées des configurations électroniques $3p^4 4p \to 3p^4 4s$ de l'ion argon. L'émission la plus intense a lieu sur les longueurs d'onde de 514,5 et 488,0 nm. L'inversion de population est réalisée dans une décharge filiforme à haut courant dans un gaz à pression réduite à la suite d'un processus d'ionisation en cascade de l'atome et de l'excitation ultérieure des ions par chocs avec les électrons de la décharge. Le dépeuplement du niveau inférieur s'effectue de façon radiative.

Le rendement du laser à argon est faible mais sa puissance de sortie est importante ; pour ces raisons les matériaux de ses éléments constitutifs (électrodes, parois du tube de décharge) sont exploités dans des conditions très sévères.

Lasers à vapeur de cadmium (leçon 14). L'émission en régime continu a lieu sur les longueurs d'ondes de 441,6 et 325,0 nm correspondant aux transitions entre les états $^3D_{3/2,5/2}$ et $^2P_{3/2,1/2}$ de l'ion Cd^+. L'inversion de population est créée en faisant passer une décharge électrique dans un mélange d'hélium et de vapeur de cadmium par transfert collisionnel de l'énergie d'excitation de l'état métastable de l'atome d'hélium à l'atome de cadmium, ce dernier s'ionise et s'excite ensuite (ionisation de Penning). Ce sont les électrons de la décharge qui fournissent l'énergie dans l'état métastable de l'hélium.

Le laser à hélium-cadmium est semblable au laser à hélium-néon en ce qui concerne le mécanisme d'excitation des niveaux lasers supérieurs, et au laser à l'argon en ce qui concerne le mécanisme de dépeuplement des niveaux inférieurs.

Laser à vapeur de cuivre (leçon 14). La substance active est la vapeur constituée par des atomes de cuivre neutres. L'émission a lieu sur la longueur d'onde de 578,2 nm et surtout sur 510,5 nm correspondant aux transitions entre des niveaux des configurations électroniques $3d^{10}4p$ et $3d^9 4s^2$ de l'atome de cuivre ; les niveaux lasers supérieurs $^2P_{1/2,3/2}$ sont des niveaux de résonance et les niveaux inférieurs $^2D_{3/2,5/2}$ sont des niveaux métastables. En conséquence l'inégalité (14.8) doit être inversée dans ce cas, et l'in-

version de population ne peut subsister que pendant un temps qui est petit devant la durée de vie du niveau laser inférieur. Cela signifie que le laser à vapeur de cuivre est à transitions autolimitées. L'inversion de population est produite par décharge électrique dans un mélange de vapeur de cuivre et d'un gaz tampon.

Les électrons de la décharge viennent se placer de préférence sur le niveau de résonance et n'excitent que faiblement le niveau métastable dont le peuplement résulte de transitions radiatives depuis le niveau supérieur, ce qui détruit l'inversion de population. L'émission a surtout lieu en régime d'impulsions. Dans le cas de décharges par impulsions courtes on réalise le régime de déclenchement d'amplification qui est tel que la durée de l'émission peut être beaucoup plus courte que la durée de vie du niveau inférieur. La fréquence de répétition des impulsions de rayonnement ne peut être supérieure à l'inverse de la durée de vie du niveau inférieur.

Les lasers à transitions autolimitées possèdent une grande valeur du rendement limite de la transition

$$\eta_{\text{lim}} = \frac{g_{\text{i}}}{g_{\text{i}} + g_{\text{s}}} \frac{h\nu}{E_{\text{s}}}. \tag{14.21}$$

Cela tient à ce que le niveau métastable (niveau laser inférieur) se situe assez bas dans l'échelle des énergies ($\eta_{\text{lim}} \approx 0{,}38$ pour le laser à vapeur de cuivre).

Laser à CO_2 (leçons 15 et 16). L'émission peut être continue ou par impulsions ; elle résulte de transitions vibro-rotationnelles évoluant dans le système des niveaux vibrationnels inférieurs de l'état électronique fondamental de la molécule CO_2. Le niveau laser supérieur est le premier état excité de la vibration de valence asymétrique 00^01 ; les niveaux lasers inférieurs sont, d'une part, le premier état excité de la vibration de valence symétrique 10^00 ($\lambda = 10{,}6\,\mu$m) et, d'autre part, le deuxième état excité de la vibration de déformation 02^00 ($\lambda = 9{,}6\,\mu$m). L'inversion de population est, pour l'essentiel, créée dans la décharge électrique par transfert collisionnel de l'énergie des molécules N_2 excitées par les électrons de la décharge, ainsi que par excitation directe de la vibration 00^01 de la molécule CO_2 lors de ses chocs avec les électrons.

En raison de la grande section de désactivation de la vibration de déformation, le dépeuplement des niveaux lasers inférieurs résulte de chocs avec le gaz tampon (généralement on utilise l'hélium). Ce processus est rendu possible par l'existence de la résonance de Fermi entre les niveaux 10^00 et 02^00, qui établit une connexion entre la vibration de valence symétrique et la vibration de déformation de la molécule CO_2. Dans le mélange gazeux le plus courant (CO_2 : N_2 : He) le bioxyde de carbone assure l'émission, l'azote emmagasine l'énergie, l'hélium dépeuple les niveaux lasers inférieurs.

En outre la présence de l'hélium facilite la décharge électrique et refroidit le mélange gazeux. On peut également envisager l'excitation dynamique dans les gaz et le transfert de l'énergie acquise par des molécules excitées chimiquement.

Dans les lasers à CO_2 à pompage par décharge électrique dans le gaz à basse pression (plusieurs dizaines de torrs), on utilise la décharge longitudinale dans des tubes de décharge relativement longs ; dans les gaz sous pression élevée (1 atm et au-dessus) on utilise la décharge transversale. A haute pression la décharge peut être autonome ou semi-autonome, ce dernier procédé étant plus avantageux. Pour amorcer et entretenir la décharge, on ionise le gaz par les rayons ultraviolets, par un faisceau d'électrons rapides, etc.

Pour faire varier la longueur d'onde de l'émission des lasers à CO_2 entre 900 et 1100 cm^{-1} on réalise un accord discret avec un pas de 1 à 2 cm^{-1} sur les raies des transitions vibro-rotationnelles dans les branches P et R des bandes vibrationnelles $00^01 \to 10^00$ et $00^01 \to 02^00$ si la pression gazeuse est inférieure à quelques atmosphères et un accord continu aux pressions supérieures à 5-6 atm. En raison de l'effet de compétition rotationnelle, pratiquement la totalité de l'énergie emmagasinée dans la distribution hors d'équilibre des particules sur les niveaux peut être émise sur une seule fréquence.

Les lasers à CO_2 possèdent des rendements élevés et peuvent émettre de grandes puissances et de grandes énergies en régimes continu et par impulsions.

Lasers à gaz dynamiques (leçon 16). La source de l'énergie du rayonnement émis est l'énergie thermique d'un gaz moléculaire échauffé se trouvant dans un état d'équilibre. On réalise l'inversion de population par refroidissement brusque du gaz, qui met en jeu les processus de la relaxation vibratoire qui évoluent à vitesses différentes suivant les modes vibrationnels des molécules polyatomiques ou suivant la nature des gaz constituant le mélange gazeux. La vitesse de refroidissement doit être suffisamment grande pour que les processus de relaxation ne dépeuplent pas le niveau laser supérieur, qui doit conserver la population qu'il avait à la haute température initiale du gaz. Dans le cas des lasers à CO_2 il s'agit de la relaxation de l'énergie accumulée sur le niveau 00^01 de la molécule CO_2 et dans l'azote vibrationnellement excité. Néanmoins le refroidissement du gaz doit s'accompagner des processus de relaxation qui dépeuplent le niveau laser inférieur. Dans le cas du laser à CO_2 il s'agit de la relaxation vibratoire de la vibration de déformation de la molécule CO_2. Pour assurer un refroidissement suffisamment rapide de grandes masses de gaz, on utilise le procédé de détente supersonique dans le vide du gaz comprimé chaud.

Pour échauffer et former le CO_2 on peut utiliser la combustion de car-

burants organiques. Dans ce cas au lieu de l'hélium, qui est un gaz onéreux, on utilise la vapeur d'eau qui se forme lors de la combustion ; celle-ci assume les fonctions de gaz tampon dont les atomes ou les molécules dépeuplent les niveaux du mode de déformation de CO_2 par collisions avec les molécules de CO_2.

Les lasers gazodynamiques fonctionnent aussi bien en régime d'impulsions (explosion, tubes de choc) qu'en régime continu (combustion, chauffage électrique).

Les lasers gazodynamiques sont en fait des machines thermiques transformant directement l'énergie thermique en énergie du rayonnement électromagnétique cohérent.

Lasers chimiques (leçon 17). L'inversion de population résulte d'une distribution hors d'équilibre de l'énergie libérée dans la réaction entre les degrés de liberté intérieurs des produits des réactions chimiques exothermiques et s'établit généralement sur les transitions entre les niveaux vibrationnels des molécules de la phase gazeuse. L'émission est due aux transitions vibro-rotationnelles dans les molécules biatomiques d'halogénures d'hydrogène, produites principalement dans des réactions de substitution telles que

$$A + BC \to AB^* + C. \tag{17.1}$$

Pour diminuer la part d'énergie utilisée pour amorcer le processus chimique, on a recours à des réactions en chaîne auto-entretenues. Plus la chaîne des réactions est longue, plus l'énergie émise sous forme de rayonnement correspond à l'énergie emmagasinée dans les corps réagissants et plus le rôle de l'énergie servant à l'amorçage de la réaction est petit.

Ces lasers peuvent fonctionner en continu et en impulsions. En impulsions la réaction chimique en chaîne est amorcée à l'aide de la photodissociation par l'ultraviolet ou à l'aide de la radiolyse par un faisceau d'électrons et elle évolue assez rapidement pour que les processus de relaxation n'aient pas le temps de détruire l'inversion de population réalisée. Le fonctionnement en régime continu n'est possible que si l'on évacue les produits de la réaction par circulation forcée du mélange gazeux. On peut réaliser un laser purement chimique sans amorçage à condition de mélanger les réactifs incompatibles et d'assurer l'évacuation rapide des produits de la réaction.

Les lasers chimiques permettent d'émettre des rayonnements ayant les longueurs d'onde suivantes : HF — 2,7 μm ; HCl — 3,7 μm ; HBr — 4,2 μm; DF — 4,3 μm. On utilise souvent le transfert par résonance de l'énergie d'excitation $DF^* \to CO_2$ pour réaliser un laser à CO_2 chimique. L'avantage des lasers chimiques réside en la possibilité de créer l'inversion de population dans des volumes importants et pour des débits massiques importants de la substance active ; un autre avantage de ces lasers est qu'ils ne nécessi-

tent pas, en principe tout au moins, de dépenses d'énergie pour réaliser à l'instant et à l'endroit voulus l'inversion de population.

Une caractéristique essentielle de ces lasers est l'existence d'un mécanisme de production de l'inversion pour lequel l'énergie du rayonnement émis est plus grande que l'énergie d'amorçage de la réaction chimique.

Laser à photodissociation (leçon 17). On réalise l'inversion de population pour des transitions entre des niveaux électroniques des atomes qui sont les produits de la photodissociation impulsionnelle des molécules stables. Un exemple en est le laser à l'iode ; les atomes d'iode excités apparaissent en soumettant des molécules à la photolyse par impulsion, par exemple

$$CF_3I + h\nu \rightarrow I^* + CF_3. \qquad (17.33)$$

L'émission résulte de la transition $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$; ces deux états appartiennent à la même configuration électronique $5p^5$ de l'iode. La longueur d'onde du rayonnement émis est égale à 1,315 μm. Le rayonnement ultraviolet d'une lumière non monochromatique est absorbé par une large bande moléculaire ; les atomes excités, qui sont les produits de la dissociation, émettent une raie fine propre aux spectres atomiques. D'importants volumes de gaz moléculaire peuvent être soumis à la photodissociation. En conséquence les lasers à photodissociation pourraient assurer l'émission de grandes énergies en impulsions.

Ces lasers ont en commun avec les lasers chimiques la simultanéité de la création de la substance active et du milieu actif du laser.

Laser à CO (leçon 18). L'émission résulte de transitions entre des niveaux de vibration-rotation de l'état électronique fondamental de la molécule CO. Les longueurs d'onde du rayonnement émis sont comprises entre 5 et 6,5 μm. L'excitation vibrationnelle s'effectue par peuplement direct des niveaux vibrationnels supérieurs des molécules CO soit à la suite de chocs avec les électrons de la décharge gazeuse, soit par transfert de l'énergie des molécules d'azote vibrationnellement excitées, etc. De ce point de vue le laser à CO ressemble au laser à CO_2.

En raison des particularités de la relaxation de l'énergie de vibration de la molécule CO, qui est un oscillateur monomode essentiellement anharmonique, une inversion vibrationnelle complète ne peut être réalisée et on observe un palier dans la distribution des populations sur les niveaux vibrationnels. L'existence d'un palier, ce qui implique qu'au moins deux niveaux possèdent des populations vibrationnelles égales, détermine l'existence d'une inversion rotationnelle partielle. L'émission qui s'effectue en cascade (cf. fig. 18.3) ne s'observe que dans la branche *P*. L'étendue du palier déterminant le spectre des fréquences d'émission dépend du rapport des taux de la relaxation vibratoire des différents niveaux vibrationnels et se trouve déterminée par la température et la composition du mélange gazeux. Pour

$T \approx 100$ K le palier peut s'étendre de $V = 5$ jusqu'à $V = 35$. Les différences entre les fréquences d'émission correspondant aux transitions de V et J différents dépendent du taux d'anharmonisme vibrationnel et de la valeur de la constante vibratoire de la molécule CO. L'évolution en cascade de l'émission ne permet pas de transformer toute l'énergie accumulée en une émission monofréquence comme dans le cas du laser à CO_2.

Le rendement total du laser à CO, relatif à toutes les raies d'émission, peut atteindre une valeur importante. Ce laser peut fonctionner en impulsions et en continu. En utilisant du xénon en qualité de gaz tampon, on peut faire fonctionner le laser à la température ordinaire avec des cuves scellées. La particularité marquante du laser à CO est l'absence d'inversion vibrationnelle et l'émission en cascade dans la branche P des transitions entre des niveaux vibro-rotationnels.

Lasers à azote et à hydrogène (leçon 18). Le laser à azote émet dans l'ultraviolet, notamment sur 337,1 nm. Pour créer l'inversion de population on utilise la décharge électrique par impulsion : l'inversion de population concerne les états électroniques excités de la molécule N_2, situés assez haut dans l'échelle des énergies. Conformément au principe de Franck-Condon, dans le cas de transitions verticales (sur le diagramme énergie-distance entre noyaux) les électrons de la décharge assurent par un processus collisionnel le peuplement du terme situé plus haut dans l'échelle des énergies, qui est relativement peu diffus et contient les niveaux lasers supérieurs. Le terme qui étant plus diffus se situe plus à droite sur le diagramme, possède une énergie moindre et contient les niveaux lasers inférieurs, n'est pas peuplé. Toujours en vertu du principe de Franck-Condon, l'émission résulte de transitions radiatives verticales dont le point de départ se situe aux points de retour sur la partie de droite du terme supérieur et le point de retombée est à la verticale sur le terme inférieur. Le mécanisme d'établissement de l'inversion de population du laser à hydrogène est similaire ; ce laser émet dans l'ultraviolet lointain (116 à 126 nm).

La durée de vie des niveaux lasers inférieurs des molécules N_2 et H_2 est plus longue que celle des niveaux de départ. De ce fait les lasers à azote et à hydrogène sont des lasers à transitions autolimitées. Le temps d'existence de l'inversion y est petit (3 à 10 ns pour le laser à N_2 et moins de 1 ns pour le laser à H_2). C'est pour cela que l'inversion de population est créée par une onde d'excitation se propageant de façon synchrone avec l'impulsion de l'émission lumineuse suivant l'axe du laser. En raison de la courte durée d'existence de l'inversion de population, le laser à azote et les lasers de même type sont des lasers super-rayonnants.

Les lasers à N_2 et H_2 se distinguent par le fait que les canaux d'excitation et d'émission sont distincts en vertu du principe de Franck-Condon appliqué aux transitions entre les termes électroniques des molécules.

Lasers à excimères (leçon 18). L'émission résulte de transitions entre des termes électroniques liants (état supérieur) et le terme électronique répulsif (état inférieur) des molécules dites excimères, i.e. des molécules ne pouvant exister qu'à l'état électronique excité. A l'état électronique fondamental de ces molécules correspond le terme répulsif. A titre d'exemples de molécules excimères on peut citer les dimères d'atomes de gaz rares, les halogénures des gaz rares, etc. La présence de molécules excimères équivaut à une inversion de population ; cela signifie que pour réaliser l'inversion il faut créer des molécules excimères. Celles-ci se forment sous l'action d'un faisceau d'électrons rapides ou dans les conditions d'une décharge dans le gaz. Le niveau inférieur se dépeuple automatiquement lorsque les molécules excimères se décomposent en retournant à l'état fondamental lors des transitions radiatives, i.e. lorsqu'elles parviennent au terme répulsif.

Les dimères des gaz rares se forment lorsqu'on excite et ionise les atomes en les soumettant à l'action d'un faisceau d'électrons rapides ; leur formation résulte de la rencontre simultanée de trois particules d'atomes excités et d'atomes non excités. Cela implique une grande pression gazeuse, supérieure à 10 atm. Les monohalogénures des gaz rares se forment lors de réactions harpons entre un atome excité du gaz rare et un atome d'halogène. Comme ces réactions évoluent lors du choc de ces deux particules, la pression gazeuse peut être moindre et on peut exciter les lasers correspondants par décharge gazeuse.

La gamme des longueurs d'onde émises par les lasers à excimères s'étend du spectre visible jusqu'à l'ultraviolet lointain. En pratique on utilise surtout les lasers à XeF, XeCl, KrF et KrCl qui émettent respectivement sur les longueurs d'onde de 352, 308, 249 et 222 nm.

Les lasers à excimères présentent la particularité suivante : le niveau inférieur est complètement dépeuplé.

Lasers à rubis (leçons 19 et 20). L'émission qui est réalisée le plus souvent en régime d'impulsions résulte de transitions entre un état excité métastable et l'état fondamental des ions Cr^{3+} (dont le terme principal est $^4F_{3/2}$) incorporés dans le réseau cristallin de α-Al_2O_3 ; la longueur d'onde d'émission est voisine de 0,69 μm (raie de luminescence R du rubis). L'inversion de population est réalisée par pompage optique selon un système à trois niveaux (cf. fig. 19.2). Le rayonnement non monochromatique émis par une source telle qu'une lampe flash à décharge électrique est efficacement absorbé par des transitions allant du niveau fondamental $^4A_2$ du chrome vers les larges bandes $^4F_2$ et $^4F_1$ (les longueurs d'onde du rayonnement de pompage sont proches de 410 et 550 nm).

L'énergie d'excitation, au lieu de s'accumuler sur les niveaux de résonance $^4F_2$ et $^4F_1$, est transférée à grande vitesse par un processus non radiatif sur un état métastable (doublet ^2E) dont la population croît en raison de

son faible taux de dépeuplement. A mesure que les particules s'accumulent sur les niveaux métastables, il s'établit une inversion stationnaire par rapport à l'état fondamental :

$$n_3 - n_1 = N(W - w_{31})/(W + w_{31}), \tag{19.7}$$

qui se constitue et subsiste si le niveau supérieur de la transition de pompage se peuple plus vite que ne se dépeuple le niveau laser supérieur pour un processus non radiatif ($W > w_{31}$).

Pour réaliser l'inversion de population il faut fournir préalablement une certaine énergie qui, dans le système de pompage à trois niveaux du rubis, sert à faire passer au moins la moitié des particules de l'état fondamental sur les niveaux métastables.

Les lasers à rubis possèdent d'excellentes caractéristiques énergétiques. Dans les bandes de pompage l'absorption est égale à 2-3 cm^{-1}. La valeur de seuil de la densité spatiale de l'énergie de pompage est égale, dans la bande verte, à 3 J/cm^3 environ. Lorsque le seuil est largement dépassé et que le laser fonctionne en mode libre, la densité spatiale de l'énergie du rayonnement dans les impulsions d'une durée de 1 ms environ représente 0,2 à 0,25 J/cm^3. Le facteur d'amplification linéaire dans les tiges de rubis atteint 0,2 à 0,25 cm^{-1}. Les lasers à rubis peuvent fonctionner en régime continu et en régime d'impulsions à répétition périodique (les monocristaux de rubis doivent alors être de très bonne qualité). On a réalisé des lasers à rubis fonctionnant en mode de commutation de Q et en mode bloqué.

L'une des principales particularités des lasers à rubis est leur système de pompage optique à trois niveaux.

Laser à néodyme (leçons 19 et 20). Les lasers à néodyme émettent en régime d'impulsions et en régime continu en utilisant les transitions entre des états métastables excités des ions Nd^{3+} (terme fondamental $^4I_{9/2}$) incorporés dans des matériaux cristallins ou dans des verres. L'inversion est réalisée par un système de pompage optique à quatre niveaux (cf. fig. 19.4). Le rayonnement de pompage non monochromatique est absorbé en provoquant des transitions de l'état fondamental dans un ensemble de plusieurs bandes relativement étroites, et de là l'énergie d'excitation est rapidement transférée sur le niveau métastable $^4F_{3/2}$. C'est ce niveau qui sert de niveau laser de départ.

C'est la transition $^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ qui possède la plus grande probabilité. La longueur d'onde de l'émission correspondante est égale à 1,06 μm. La fente énergétique entre les états $^4I_{11/2}$ et $^4I_{9/2}$ (cf. fig. 20.3) assure le cycle de pompage optique à quatre niveaux des lasers à néodyme. En raison du grand taux de transfert non radiatif de l'énergie des bandes de pompage vers le niveau laser supérieur, se trouve assurée une inversion de population

stationnaire

$$n_3 - n_4 = NW(w_{41} - w_{34})/w_{23}w_{34}, \qquad (19.20)$$

ce qui distingue ce cas de celui du laser à rubis.

La condition de l'existence d'une inversion positive $w_{41} > w_{34}$ signifie que le niveau laser inférieur doit être dépeuplé par des transitions non radiatives à l'état fondamental à un taux plus grand que le taux de son occupation résultant des transitions depuis le niveau laser supérieur. Le seuil de pompage assurant l'inversion de population est tellement bas qu'il n'existe pratiquement pas lorsque la condition de validité du cycle de pompage optique à quatre niveaux est vérifiée, ce qui implique que le niveau laser inférieur se trouve au-dessus du niveau fondamental d'une distance énergétique $\Delta E \gg kT$.

Les verres à néodyme peuvent avoir une grande concentration de centres actifs, ils présentent un important élargissement inhomogène de la raie d'amplification et permettent de fabriquer des milieux actifs de gros volume. Les lasers à verre à néodyme fonctionnent en régime de mono-impulsions de grande énergie. Dans les matériaux cristallins, notamment dans les cristaux de grenat d'aluminium-yttrium, la concentration de néodyme est plus petite, l'élargissement de la raie d'amplification est notablement plus faible, les dimensions du milieu actif sont fortement limitées par les conditions de croissance de cristaux homogènes. Les lasers à cristaux de grenat dopés au néodyme fonctionnent en régime continu et en régime d'impulsions périodiques.

Les traits distinctifs des lasers à néodyme sont, d'une part, leur cycle de pompage optique à quatre niveaux et, d'autre part, leurs excellentes caractéristiques énergétiques.

Lasers à colorants (leçon 22). Ces lasers fonctionnent en régimes continu et pulsé en utilisant les transitions entre les niveaux singulets fondamental et excité des molécules complexes des colorants organiques. Généralement on utilise des solutions liquides fortement diluées d'un colorant. L'inversion de population est réalisée à l'aide d'un cycle de pompage optique à quatre niveaux (cf. fig. 22.2 et 22.3). Le rayonnement de pompage qui est absorbé par des transitions singulet-singulet assure le peuplement des états de vibration-rotation du terme singulet excité. Conformément au principe de Franck-Condon, dans le cas de configurations d'équilibre décalées ce sont les niveaux vibrationnels supérieurs qui seront excités.

A l'intérieur du terme singulet excité il se produit une relaxation non radiative rapide et l'énergie d'excitation est transférée vers les niveaux vibrationnels inférieurs de ce même terme. A ce moment, toujours en vertu du principe de Franck-Condon, la molécule effectue une transition radiative vers les niveaux vibrationnels supérieurs du terme singulet fondamental.

L'énergie du photon émis est plus petite que l'énergie du photon absorbé par pompage (déplacement de Stokes). L'excédent d'énergie rassemblé sur les niveaux lasers inférieurs est relaxé par thermalisation rapide (0,1 à 1 ps) dans les limites du terme. Cette dernière ainsi que le principe de Franck-Condon déterminent le cycle de pompage optique à quatre niveaux des lasers à colorants.

L'existence d'un spectre continu de termes électroniques est due à la superposition du grand nombre d'états vibratoires rapprochés des molécules polyatomiques lourdes des colorants organiques et se reflète dans l'élargissement non homogène des raies spectrales des transitions entre termes. Lorsque le résonateur est accordé à une fréquence donnée contenue dans les limites de la raie d'amplification, grâce à la réaction positive le terme excité est dépeuplé radiativement à cette fréquence. En réaccordant le résonateur à une autre fréquence, on modifie la fréquence d'émission. Le taux élevé de la relaxation intraterme fait que toute l'énergie accumulée par le terme excité (déduction faite des pertes par effet Stokes) est déversée dans l'émission sur une seule fréquence.

Les lasers à colorants émettent dans une gamme de longueurs d'onde s'étendant du proche infrarouge jusqu'au proche ultraviolet. L'accord continu de la longueur d'onde de l'émission s'effectue dans une gamme de quelques dizaines de nanomètres, la monochromaticité de l'émission est estimée à quelques MHz.

Parmi les caractéristiques les plus marquantes des lasers à colorants, notons l'accord continu de la longueur d'onde du rayonnement émis et la possibilité de fonctionner aussi bien en régime continu qu'en régime d'impulsions très courtes (subpicosecondes).

Lasers à centres F (leçon 23). Le système des niveaux et la méthode de réalisation de l'inversion de population sont similaires à ceux des lasers à solutions de colorants organiques. Le milieu actif est constitué par les défauts ponctuels des structures cristallines, qui sont appelés centres colorés. Leur spectre de luminescence est situé dans le proche IR ; c'est donc dans cette partie du spectre que les lasers de ce type fonctionnent en régimes continu et pulsé ; on peut effectuer un accord continu dans une gamme de fréquences d'une étendue de $1000\,\mathrm{cm}^{-1}$ environ. La largeur des raies d'amplification est déterminée par l'intense interaction des électrons piégés par les défauts ponctuels avec les ions environnants ; du fait de cette interaction des niveaux vibrationnels apparaissent dans les termes électroniques. Il existe un grand nombre de types de défauts ponctuels, tels que les lacunes anioniques et l'électron piégé, ainsi que les associations de ces défauts qui constituent les centres colorés dans les cristaux transparents. Dans les lasers on utilise, par exemple, les centres F_2^+ (0,8 à 1,1 μm) et F_2^- (1,1 à 1,3 μm) dans les cristaux de LiF.

La particularité marquante des lasers à centres F est qu'on y utilise en qualité de centres d'impuretés incorporés dans des matrices cristallines, les défauts ponctuels de ces matrices dont le spectre permet de réaliser un cycle de pompage optique à quatre niveaux dans de larges bandes de luminescence du proche infrarouge.

Lasers à semiconducteurs (leçons 24 et 25). Ces lasers peuvent fonctionner en régimes continu et pulsé en utilisant les transitions radiatives interbandes dans les semiconducteurs à transitions directes. On réalise l'inversion de population en créant des porteurs hors d'équilibre dans les bandes de conduction et de valence. Pour que l'inversion soit possible, il faut que les quasi-niveaux de Fermi des porteurs se situent à l'intérieur des bandes d'énergie permises correspondantes, i.e. il faut que soit vérifiée la condition

$$F_n - F_p > E_g. \tag{24.13}$$

Dans les lasers à injection les paires électron-trou hors d'équilibre sont créées par pompage à l'aide d'un courant continu qui injecte des porteurs dans la zone de la jonction *p-n* de la diode à semiconducteur. L'inversion de population est plus facilement réalisée dans des diodes dont les régions p et n sont fortement dopées et dont les gaz d'électrons et de trous sont fortement dégénérés. Les grandes densités d'états dans les bandes déterminent alors les grandes valeurs du facteur d'amplification. La largeur de la bande spectrale où l'amplification est possible dépend de la fréquence des photons amplifiés et celle-ci est donnée par la condition

$$E_g < \hbar\omega < F_n - F_p. \tag{24.14}$$

On a réalisé des lasers à injection dans de nombreux semiconducteurs monovallées à transitions verticales. L'un des meilleurs est le laser à l'arséniure de gallium ($\lambda = 0{,}84\,\mu$m). L'utilisation de diodes lasers à hétérojonctions permet d'abaisser la valeur de seuil du courant d'injection et d'assurer le fonctionnement du laser en régime continu à la température ordinaire. Comme l'étendue de la zone active des diodes lasers ne représente que quelques micromètres, la puissance d'émission d'une diode est assez faible et en régime continu elle est de l'ordre de quelques watts.

La longueur d'onde de l'émission dépend de la largeur de la bande interdite du semiconducteur. L'utilisation de cristaux à composition variable permet de couvrir toute une gamme de longueurs d'onde. Selon la composition, le système AlGaAs permet d'obtenir des émissions lasers dans la gamme de 0,63 à 0,90 μm, le système AlGaSb dans la gamme de 1,2 à 1,80 μm, le système GaInAs dans la gamme de 0,9 à 3,4 μm. Les solutions solides PbSnTe et CdHgTe permettent d'élaborer des lasers émettant sur 30 à 40 μm.

L'accord continu de la longueur d'onde d'émission des diodes lasers peut être réalisé par variation de la température du cristal, par compression triaxiale et par application d'un champ magnétique.

La particularité marquante des lasers à injection est que l'inversion de population est assurée par l'introduction de porteurs hors d'équilibre dans les régions *p* et *n* de la diode par pompage à l'aide du courant continu. En découlent la compacité, le rendement élevé, la rapidité de la commande, la gamme étendue des longueurs d'onde et l'accord continu des lasers à semiconducteurs.

Lasers à électrons libres (leçon 26). Un rayonnement est émis lorsqu'on fait passer un faisceau d'électrons relativistes à travers un champ extérieur spatialement périodique. Le plus souvent on utilise la propagation d'électrons relativistes le long de l'axe d'un ondulateur qui est un aimant dont le champ est constant dans le temps, mais présente des variations spatiales périodiques. L'émission stimulée se produit lorsque parallèlement au faisceau d'électrons se propage le long de l'axe de l'ondulateur une onde électromagnétique venue de l'extérieur et ayant une fréquence légèrement inférieure à la fréquence de résonance ω_0 de l'interaction de l'onde avec les électrons (cf. formule (26.7)).

Le rayonnement émis est amplifié dans la région occupée par le paquet d'électrons pendant la traversée de l'ondulateur. Les miroirs du résonateur dans lequel est disposé l'ondulateur obligent le rayonnement amplifié à rester dans le résonateur jusqu'à ce qu'un nouveau paquet d'électrons pénètre dans l'ondulateur, ce qui provoque une nouvelle amplification du rayonnement. En répétant maintes fois ce processus, on produit une émission pulsée. La longueur d'onde de l'émission dépend de la période Λ de l'ondulateur et du facteur relativiste γ :

$$\lambda = \Lambda/2\gamma^2. \qquad (26.2)$$

Dans les lasers réels une énergie des électrons de 25 à 50 MeV correspond à une émission dans la partie centrale de la gamme de l'infrarouge.

La principale particularité des lasers à électrons libres est qu'ils utilisent en qualité de milieu actif un système de particules qui, n'étant pas quantique par essence, admet une interprétation classique. Une des conséquences de cet état de choses est la continuité du spectre des fréquences pouvant être émises, ce qui implique un accord continu de la longueur d'onde du rayonnement émis ; cet accord est facile à faire puisque la longueur d'onde est déterminée par l'énergie des électrons constituant le faisceau relativiste.

* * *

L'objet principal de ces leçons a été l'exposé des fondements physiques de l'électronique quantique et des procédés utilisés pour mettre en œuvre

l'effet de l'émission stimulée dans les systèmes à niveaux d'énergie discrets afin d'amplifier et de générer des ondes électromagnétiques. On a déjà indiqué que l'électronique quantique est presque toujours l'électronique des états liés ; dans cette électronique le rayonnement monochromatique est surtout émis sur des fréquences fixes.

Les possibilités d'accord de la fréquence de l'émission laser correspondant aux transitions entre des états liés dépendent de l'aptitude du système à subir des actions extérieures, provoquant un élargissement de la raie d'émission correspondant à la transition. On peut donner en exemple les lasers moléculaires à haute pression gazeuse, les lasers à colorants ou à centres colorés, etc. Mais lorsque l'électron n'est que faiblement lié et que les niveaux discrets élargis par les actions extérieures cèdent la place à de larges bandes d'énergies permises, l'accord de la longueur d'onde se trouve grandement facilité, comme le prouve l'exemple des lasers à diodes semiconductrices. L'étape suivante est le passage aux électrons libres caractérisés par un spectre continu, ce qui permet de contrôler la longueur d'onde de l'émission en modifiant l'énergie des électrons accélérés.

Conclusion. LES TENDANCES DE DÉVELOPPEMENT

Extension des longueurs d'onde de l'émission laser. La gamme de l'IR. Spectre visible. Méthodes de l'optique non linéaire, génération d'harmoniques et de fréquences différentielles. Lasers à effet Raman stimulé. Gammes de l'ultraviolet lointain et des rayons X. Lasers à rayons gamma. Domaines d'application des lasers.

L'un des principaux objectifs de l'électronique quantique est l'extension de la gamme des longueurs d'onde du rayonnement laser, surtout dans les parties du spectre où les méthodes lasers ne se sont pas encore frayé le chemin. En guise de conclusion de notre cours, nous nous proposons d'esquisser les perspectives qui s'offrent aujourd'hui pour résoudre ce problème.

La méthode la plus générale dont dispose l'électronique quantique pour maîtriser toute la gamme optique depuis l'infrarouge lointain jusqu'à l'ultraviolet extrême est l'élaboration de lasers à électrons libres (cf. leçon 26). Mais l'élaboration de ces lasers se trouve encore au stade préliminaire, celui des études théoriques. Ils sont techniquement compliqués et diffèrent radicalement de l'idée qu'on se fait généralement des lasers en électronique quantique. Nous estimons que la recherche de nouveaux types de lasers fondés sur les conceptions traditionnelles de l'électronique quantique est absolument nécessaire.

Dans la gamme de l'infrarouge, notamment de l'IR lointain (ondes submillimétriques), c'est la méthode du pompage optique des gaz moléculaires qui offre le plus de potentialités. Comme les raies d'absorption sont fines,

à la différence des corps solides le pompage des gaz doit être réalisé par résonance, i.e. par faisceau laser. En raison de la multitude de spectres de vibration-rotation des molécules on peut réaliser l'inversion de population à l'aide de différents systèmes de pompage de leurs niveaux vibrationnels. En principe on peut obtenir l'inversion de population en utilisant les transitions : entre les niveaux excités appartenant à des modes vibrationnels différents d'une molécule (i.e. sur des vibrations composées, lorsque l'une d'elles est soumise au pompage), entre les niveaux excités d'un même mode vibrationnel, le pompage étant appliqué à un harmonique de ce mode, entre les niveaux rotationnels des états vibrationnels fondamental et (ou) excité en assurant le pompage de la transition vibro-rotationnelle principale. Dans ce dernier cas le rayonnement émis correspond généralement à la gamme des ondes submillimétriques.

Les méthodes d'inversion de population qui paraissent les plus intéressantes sont celles qui font intervenir les niveaux vibrationnels excités, le pompage étant appliqué à la vibration composée (laser à CF_4, $\nu \approx \approx 600\,\mathrm{cm}^{-1}$) ou les niveaux vibrationnels excités appartenant à la bande à laquelle est appliqué le pompage, mais avec un défaut de quanta rotationnels (lasers à NH_3, $\nu \approx 800\,\mathrm{cm}^{-1}$).

Les lasers submillimétriques à transitions entre niveaux rotationnels ainsi que les lasers à NH_3 et CF_4 et différents autres utilisant les transitions entre niveaux vibrationnels fonctionnent avec pompage par l'émission des lasers à CO_2 (cf. leçons 15 et 16). Les potentialités qu'offre le pompage des gaz moléculaires par le rayonnement des lasers à CO_2 résultent de ce que ce pompage permettrait d'étendre la gamme des longueurs d'onde jusqu'à 10—50 μm et de disposer de sources de rayonnement de fréquence accordable. Cela permettrait en outre de transposer dans cette partie du spectre l'ensemble des propriétés des lasers à CO_2.

Pour obtenir dans la partie visible et les parties contiguës du spectre de nouvelles raies d'émission, il serait avantageux de créer de nouvelles molécules excimères plus complexes telles que les exciplexes (complexes excités) de formules ArF_2^*, $XeCl_2^*$, $XeBr_2^*$ et les excimères — oxydes des gaz rares. La photodissociation des vapeurs des molécules complexes conduisant à la formation de dimères excités (par exemple dissociation des dihalogénures de cadmium, de zinc et de mercure donnant naissance aux dimères CdI^*, ZnI^*, HgI^*, $HgBr^*$, $HgCl^*$) ou la dissociation de composés halogénés de formules compliquées conduisant à la formation d'interhalogènes excités tels que IF^* offrent également des possibilités intéressantes. La lumière de recombinaison des molécules N_2, O_2, Cl_2, etc., présente également de l'intérêt. On peut espérer que les lasers à gaz de tous ces types permettraient de couvrir tout le spectre visible d'un grand nombre de raies d'émission laser. On connaît déjà les longueurs d'onde de l'émission des nouveaux la-

sers à excimères et à photodissociation : 310, 440, 475, 490, 503, 520, 555, 656 nm, etc.

Les potentialités des lasers à solides dopés par des ions des métaux de transition ou à cristaux contenant des centres colorés sont encore loin d'être épuisées dans les parties visible et IR du spectre. Récemment on a réalisé l'émission sur des transitions entre des niveaux électroniques vibrationnels de la bande ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$ de l'ion Cr^{3+} dans le grenat de gadolinium-scandium-gallium. L'élaboration de nouvelles matrices contenant de nouvelles impuretés de dopage, ainsi que le contrôle des processus de migration de l'énergie et de sensibilisation devraient étendre le domaine spectral couvert par les lasers de ce type.

On doit s'attendre aussi à l'élaboration de lasers à centres colorés, qui permettraient de progresser dans la gamme des longueurs d'onde où manquent les lasers accordables d'une puissance d'émission tant soit peu notable. Citons par exemple les lasers pour la gamme de 2 à 3 μm, à centres F dans les cristaux de KCl et RbCl contenant du lithium.

En électronique quantique une place importante revient aux méthodes de l'optique non linéaire qui servent notamment à la transformation de la fréquence des émissions lasers. Ces méthodes sont de portée assez générale et doivent faire l'objet d'un cours spécial ; mais comme il est question de l'extension du spectre des fréquences d'émission des lasers, on ne peut manquer de mentionner les méthodos de l'optique non linéaire. On a introduit dès la troisième leçon la notion d'optique non linéaire telle qu'elle a été définie par S. Vavilov à l'occasion de la diminution de l'absorption lorsque l'intensité de l'éclairage augmentait (effet de saturation). La propagation d'une onde dans un milieu ne peut être décrite par des équations linéaires que lorsque les constantes optiques du milieu sont indépendantes du champ de l'onde. Dans ce cas on a affaire à l'optique dite linéaire, mais lorsque les constantes optiques du milieu deviennent fonction de l'intensité de l'onde lumineuse qui s'y propage, les équations décrivant la propagation deviennent non linéaires et on passe dans le domaine de l'optique non linéaire.

Les méthodes de transformation de la fréquence des rayonnements électromagnétiques monochromatiques, fondées sur des processus non linéaires, telles que la détection, la génération d'harmoniques, la formation de la somme et de la différence des fréquences, sont bien connues en électronique classique. La forte intensité, la grande directivité et la monochromaticité des rayonnements lasers ont permis d'appliquer ces méthodes radiotechniques à la gamme optique. R. Khokhlov contribua grandement au développement des méthodes de l'optique non linéaire, notamment aux méthodes de transformation de la fréquence d'émission laser.

Etant obligés d'être concis, nous ne ferons que citer deux propositions

fondamentales se trouvant à la base des méthodes d'optique non linéaire de transformation de la fréquence des rayonnements lasers.

Premièrement, la susceptibilité du milieu devient non linéaire lorsque celui-ci est soumis à l'action d'un champ fort. Cela implique que dans le développement de la polarisation du milieu en fonction du champ on doit tenir compte des coefficients de proportionnalité figurant devant les termes contenant les puissances supérieures de l'intensité de champ électrique de l'onde lumineuse :

$$P = \chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \ldots,$$

où $\chi^{(n)}$ $(n > 1)$ sont les susceptibilités non linéaires d'ordre n. Il s'ensuit que sous l'action d'un intense champ monochromatique, la polarisation, i.e. le moment dipolaire de l'unité de volume du milieu, oscille non seulement à la fréquence fondamentale, mais aussi à ses harmoniques. Sous l'action d'un rayonnement contenant plusieurs fréquences apparaissent des oscillations ayant des fréquences égales à la somme et à la différence des fréquences du rayonnement. Cela signifie que le champ de rayonnement qui se propage dans un milieu non linéaire comporte des composantes harmoniques et des composantes de fréquences différentielles et de fréquences sommaires.

Deuxièmement, la condition nécessaire d'une transformation de fréquence efficace est la synchronisation en phase de l'onde de la fréquence initiale et de l'onde de la fréquence désirée, afin d'amasser l'effet de transformation sur toute la longueur du milieu non linéaire. Cela tient à ce qu'à la différence de la gamme radioélectrique, en optique les dimensions de la région d'interaction non linéaire sont notablement supérieures à la longueur d'onde, de sorte que l'interaction a lieu dans le régime d'ondes progressives.

On comprend toute l'importance que présente l'existence d'un matériau non linéaire permettant de transformer la fréquence d'une certaine émission laser en une autre fréquence. Pour la génération d'harmoniques dans le spectre visible on utilise surtout les cristaux tels que ADP (dihydrophosphate d'ammonium), KDP (dihydrophosphate de potassium), l'iodate et le niobate de lithium, le niobate de sodium-baryum, etc. Pour la génération de fréquences différentielles permettant de couvrir la partie IR du spectre jusqu'à 20 μm, on utilise les cristaux de séléniure de gallium, de thiogallate d'argent, le germanophosphure de zinc, l'arsénogermanate de cadmium, etc.

Il convient de noter l'efficacité des transformations de fréquence par le procédé de génération des harmoniques pour le spectre visible et le proche ultraviolet. L'intensité des rayonnements ainsi produits est du même ordre de grandeur que celle du rayonnement émis par les lasers à rubis, à néodyme et à colorants. Mais dans l'infrarouge l'intensité de l'émission

à des fréquences différentielles est encore trop faible (fractions de millijoule en régime d'impulsions et fractions de milliwatt à haute cadence de répétition des impulsions). Il reste donc beaucoup à faire dans ce domaine.

L'utilisation des corps solides en qualité de matériaux non linéaires est limitée par leur domaine de transparence. Pour pouvoir progresser vers l'ultraviolet lointain, on peut faire appel aux atomes et aux molécules en phase gazeuse. La diminution de la densité du milieu gazeux peut être compensée par l'accroissement des susceptibilités non linéaires, déterminé par ce que les fréquences des champs interagissants sont proches de la résonance. Etant donné que les raies de résonance des gaz sont fines et que les gaz sont transparents hors résonance, les milieux gazeux conviennent à la réalisation d'interactions non linéaires depuis l'infrarouge jusqu'à l'ultraviolet lointain et jusqu'aux rayons X mous.

Un avantage notable des milieux gazeux est la possibilité de contrôler le synchronisme en phase en mélangeant plusieurs gaz dont les indices de réfraction dépendent différemment de la longueur d'onde. Pour une intensité du rayonnement principal de 10^{14} à 10^{15} W/cm^2, les vapeurs des métaux alcalins et les gaz rares assurent la génération des 5e, 7e et 9e harmoniques, ce qui crée une émission dans la gamme de 100 à 40 nm. L'efficacité de la transformation est généralement très faible. Actuellement pour la gamme de 100 nm l'efficacité atteint 10^{-5} au maximum. La puissance des impulsions d'une durée de l'ordre de la picoseconde atteint plusieurs centaines de watts. C'est un résultat encourageant, mais il ne permet pas d'affirmer qu'on a réussi à étendre les émissions lasers dans la gamme de l'ultraviolet lointain.

Parmi les effets non linéaires qu'on pourrait utiliser pour la transformation de la fréquence des émissions lasers figure l'effet Raman. On utilise surtout l'effet Raman dû aux vibrations des molécules. L'énergie d'interaction des molécules avec l'onde lumineuse est déterminée par le carré de l'intensité du champ de l'onde. Lorsque l'intensité du rayonnement incident est grande, l'action qu'exercent ensemble les champs électriques de la lumière incidente et de la lumière diffusée est telle que la force qui s'exerce sur les molécules comporte une composante dont la fréquence est égale à la différence des fréquences de ces champs. Or, selon la définition de l'effet Raman, cette fréquence est égale à la fréquence de vibration propre des molécules. Il se produit ainsi une intensification des vibrations moléculaires, ce qui conduit à une croissance de l'intensité de la lumière diffusée.

L'accroissement de l'intensité de la lumière diffusée détermine en retour une intensification des vibrations des molécules du milieu dispersif, etc. Ainsi se trouvent réalisés la réaction et l'effet Raman stimulé. En plaçant le milieu de diffusion dans une cavité résonnante, on obtient un laser à effet Raman stimulé. La différence entre la fréquence d'émission du laser

à effet Raman stimulé et la fréquence du laser de pompage est égale à un multiple de la fréquence de vibration propre des molécules du milieu de diffusion participant à l'effet Raman. Ce type de laser peut fonctionner en mettant à profit non seulement les vibrations des molécules, mais aussi leurs mouvements de rotation. Le rendement de la transformation de l'émission de pompage en émission de fréquence cherchée peut être fort important puisque, en principe, il n'est limité que par les pertes de Stokes.

La diffusion Raman stimulée offre d'excellentes potentialités pour la transformation de la fréquence des émissions lasers et on l'utilise largement avec les lasers chimiques, à excimères, à néodyme et à CO_2. On utilise aussi la multiplication de fréquence par une répétition en cascade de l'effet Raman stimulé.

Les méthodes de l'optique non linéaire possèdent un bon rendement, mais leur mise en œuvre est limitée par les lasers existants et leur efficacité est faible lorsqu'il s'agit d'obtenir des rayonnements UV lointains ou des rayons X. L'appropriation des nouveaux domaines spectraux, caractérisés par des longueurs d'onde toujours plus courtes, rend nécessaire l'élaboration de méthodes directes de réalisation de l'inversion de population.

Dans ce qui précède il a été question des méthodes utilisées pour élargir la gamme des longueurs d'onde des émissions lasers qui ont déjà été réalisées et qui commencent à entrer dans la pratique de l'électronique quantique. Nous abordons maintenant des questions prospectives dont l'étude est encore peu avancée.

Commençons par le domaine de l'ultraviolet lointain, conventionnellement délimité par les longueurs d'onde de 1 et 50 nm. Du côté des petites longueurs d'onde ce domaine touche au domaine des rayons X mous.

Nous avons déjà signalé dans la leçon 18 que les difficultés d'appropriation de la gamme de l'ultraviolet sont des difficultés fondamentales, de principe. Il résulte de la formule (18.6) que le facteur d'amplification décroît proportionnellement à ν^{-5} à mesure que la longueur d'onde diminue. Cette forte décroissance de l'amplification déterminée par une augmentation de la fréquence rend nécessaire une forte augmentation de l'intensité de pompage ; dans ces conditions il faudra consentir de très grandes dépenses d'énergie pour créer une inversion de population.

Examinons les principaux aspects de ce problème en utilisant l'article de revue de F. Bounkine, V. Dergiev et S. Yakovenko, intitulé « Prospective d'amplification des rayonnements de l'ultraviolet lointain » (Kvantovaja Elektronica, 1981, **8**, N 8, pp. 1621 à 1649). Notons d'abord que dans une analyse des possibilités d'élaboration des lasers émettant dans l'UV lointain, il suffit de nous limiter à l'examen des questions concernant l'inversion de population conduisant à une forte superluminosité. Il est prématuré de discuter de la question de la réaction dans cette gamme d'ondes très courtes.

On ne peut trop compter sur la possibilité d'utiliser les résonateurs ouverts à deux miroirs dans l'UV lointain, quoiqu'il semble possible de concevoir des circuits à réaction répartie. La question majeure est certes la question de la création de l'inversion de population.

Considérons la question du choix du milieu actif. Notons pour commencer qu'à une longueur d'onde de 1 nm correspond un quantum d'énergie égale à 1240 eV. Or la plus grande variation de l'énergie d'un électron périphérique (électron optique) d'un atome neutre exécutant une transition entre niveaux discrets ne peut être supérieure à l'énergie nécessaire pour arracher cet électron de l'atome. De tous les éléments du système périodique c'est l'atome d'hélium qui possède le plus grand potentiel d'ionisation qui n'est que de 24,6 eV. Les transitions mettant en jeu des énergies se chiffrant par centaines d'électrons-volts ne peuvent concerner que les niveaux d'énergie des électrons internes d'atomes à grand nombre d'électrons. Or la spectroscopie des configurations à grand nombre d'électrons est encore mal connue, la cinétique des processus de relaxation est compliquée et l'existence de nombreux canaux de dépeuplement radiatif des états excités rend aléatoire l'analyse théorique et malaisée l'étude expérimentale des processus d'excitation et de relaxation de ces systèmes. Pour toutes ces raisons on se penche surtout sur l'étude des potentialités d'amplification à l'aide de transitions évoluant dans les couches extérieures d'ions à charges multiples. Par exemple, dans le cas d'ions hydrogénoïdes de fer, de cuivre, de zinc, etc., le seul électron qui subsiste est si fortement attaché au noyau que les transitions entre ses niveaux d'énergie correspondent au côté des ondes courtes de l'UV lointain. On retrouve une situation analogue avec les ions à structure d'hélium et de néon d'atomes plus lourds que ces deux éléments. Les moyens techniques modernes tels que la disruption par laser ou les faisceaux électroniques permettent de créer des plasmas contenant des ions à charges multiples.

On peut concevoir plusieurs méthodes de création de l'inversion de population sur les transitions entre niveaux de la couche extérieure d'un ion à charges multiples. Les meilleures potentialités présenterait le système du pompage de recombinaison du niveau de départ avec dépeuplement radiatif simultané du niveau de retombée. Pratiquement dans tous les cas de recombinaison collisionnelle l'électron passe d'abord à un état hautement excité pour revenir après une cascade de transitions à l'état fondamental. Si l'un des états excités de cette cascade se dépeuple plus rapidement que l'un des états de plus grande énergie, une inversion de population apparaît dans le plasma en voie de recombinaison et cette inversion subsiste tant que le flux de recombinaison collisionnelle prédomine sur les processus d'ionisation et d'excitation. Un plasma se trouvant hors d'équilibre au stade de recombinaison doit avoir une température électronique assez basse (état de surfu-

sion). Pour conserver l'état hors d'équilibre, il faut refroidir le plasma à une vitesse telle que le temps de refroidissement soit inférieur au temps de recombinaison.

On peut discerner ici une certaine analogie avec la méthode gazodynamique de création d'une inversion de population (cf. leçon 16). Pour évaluer la durée du refroidissement accompagnant la dilatation d'un plasma ayant la forme d'un cylindre on pose qu'elle est du même ordre de grandeur que le rapport du rayon initial du cylindre à la vitesse de déplacement de la périphérie du cylindre. Pour un rayon de 10^{-2} cm et une vitesse de dilatation de 10^6 à 10^7 cm/s, le temps de refroidissement est de 1 à 10 ns. Le temps de recombinaison dépend du système de niveaux, du type d'ion, du mécanisme de dépeuplement de l'état inférieur, des caractéristiques du plasma et de la longueur d'onde de l'émission que l'on voudrait obtenir. Dans le cas optimal du dépeuplement radiatif du niveau inférieur d'un ion hydrogénoïde lors de l'inversion relative à la transition $n = 4 \rightarrow n = 3$, où n est le nombre quantique principal, la condition d'un état hors d'équilibre par rapport à la recombinaison impose à la longueur d'onde de l'émission une limite inférieure égale à 2-3,5 nm.

Mais pour atteindre une longueur d'onde $\lambda \approx 1$ nm, ce n'est plus la vitesse de refroidissement qui importe mais la quantité d'énergie qu'il faut mettre en jeu. Dans le système qu'on a envisagé, à mesure que la longueur d'onde diminue le minimum d'énergie à mettre en jeu augmente si rapidement que pour passer de $\lambda = 10$ nm à $\lambda = 1$ nm, la consommation d'énergie doit passer de 3 kJ/cm^3 à 0,3 GJ/cm^3.

Sans nous attarder aux difficultés que présente la formation d'un « bunch » de plasma ayant les paramètres requis pour assurer l'émission dans l'UV lointain, notons seulement qu'on a obtenu, avec des plasmas hors d'équilibre des gaz rares additionnés de vapeurs métalliques, des émissions dans le spectre visible et dans les domaines de l'IR et de l'UV adjacents sur un grand nombre de raies (près de 40) correspondant à des transitions dans des ions portant une seule charge de Be, Mg, Al, Ca, Sr, Sn, Ba, Pb, etc. L'efficacité du dépeuplement radiatif des niveaux inférieurs a été prouvée. On voit apparaître des publications concernant l'observation des inversions de population dans les plasmas en voie de recombinaison créés par décharge laser disruptive pour des transitions correspondant à l'ultraviolet lointain dans des ions lourds à charges multiples.

Il doit être possible d'élaborer des générateurs efficaces d'émission stimulée dans la gamme de l'ultraviolet lointain.

On n'a envisagé que l'une des approches de la résolution de cet important problème de l'électronique quantique. On peut créer un plasma hors d'équilibre par rapport à la recombinaison et le maintenir dans cet état à l'aide d'une source de rayonnement ionisant intense. Si l'intensité du

rayonnement émis par la source extérieure est assez importante (10^{15} à 10^{16} W/cm^2), il est inutile de séparer dans le temps le processus d'injection d'énergie dans le plasma et le processus de refroidissement des électrons. On peut alors lever la limitation imposée à la longueur d'onde de l'émission par la durée de refroidissement et il devient possible de générer des rayons X de longueur d'onde de 0,1 à 1 nm sur des transitions entre les états hydrogénoïdes des ions à charges multiples d'atomes lourds.

Soulignons une nouvelle fois que l'élaboration de générateurs lasers de rayonnement de la gamme de l'ultraviolet lointain et de la gamme des rayons X est l'un des principaux objectifs de l'électronique quantique. Cet objectif n'est pas encore résolu, mais la théorie et les premières données expérimentales témoignent de ce que ce problème peut être résolu.

Le problème de l'élaboration de lasers à rayon gamma qui pourraient émettre un rayonnement électromagnétique monochromatique avec des énergies des photons s'élevant à des dizaines et des centaines de kiloélectrons-volts (longueurs d'onde comprises entre quelques dixièmes et quelques millièmes de nanomètre) est beaucoup plus ardu. L'analyse de la question fait apparaître des problèmes se rapportant à différentes disciplines scientifiques. Outre l'électronique quantique se trouvent concernées la spectroscopie optique et nucléaire, la chimie, la cristallographie, la physique du solide, la physique des neutrons.

En nous fondant sur les données de l'article de J. Baldwin, J. Solem et V. Goldansky in *Review of Modern Physics,* 1981, **53**, Part I, pp. 687-744, nous exposerons certains aspects essentiels du problème.

Remarquons d'abord que l'énergie des quanta des rayons gamma correspond aux transitions intranucléaires. En conséquence on s'intéresse à la possibilité de mettre à profit les transitions entre les états stationnaires d'isomères nucléaires. Il existe de nombreux noyaux, qu'ils soient stables ou radioactifs, possédant des états isomères à grandes durées de vie. C'est ainsi que dans le cas d'énergies de transitions de 6 à 120 keV ($\lambda \approx 0,2$ à 0,01 nm) il existe des noyaux dont les états isomères ont des durées de vie allant de quelques nanosecondes à quelques heures. Cela tient à ce que les transitions radiatives correspondantes sont beaucoup plus fortement interdites que les transitions génératrices de rayons X d'énergies comparables évoluant entre les états électroniques liés de l'atome.

L'impulsion de recul accompagnant l'émission d'un quantum gamma est reçue par le noyau qui a émis ce quantum. Les lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion impliquent que pour les noyaux libres ou faiblement liés les mouvements thermiques déterminent un déplacement et un élargissement notables des raies d'émission. Lorsque le noyau est lié dans un corps solide, l'impulsion de recul est transmise au réseau cristallin tout entier. Dans ce dernier cas la raie d'émission est beaucoup plus fine que

dans le cas de noyaux libres. Cette émission « sans recul », caractérisée par une raie intense de largeur pratiquement naturelle et pratiquement non déplacée, est connue sous le nom d'effet Mössbauer. L'émission nucléaire Mössbauer a été observée sur les isotopes ^{57}Fe, ^{67}Zn, ^{73}Ge, etc.

Pour assurer l'amplification il faut réaliser une inversion de population. Dans les réactions nucléaires et de désintégration radiative, il peut arriver que le rapport des vitesses de formation et de désintégration spontanée de certains noyaux de la filiation favorise la création d'une inversion de population sur les transitions de Mössbauer dans les noyaux, un peu comme cela se produit dans un plasma hors d'équilibre pour les transitions électroniques d'ions à charges multiples. L'excitation des noyaux peut être réalisée par un intense bombardement par des flux de neutrons de cristaux contenant des impuretés pouvant être transformées en noyaux susceptibles d'effet Mössbauer ; on peut aussi avoir recours aux méthodes radiochimique, mécanique ou laser pour séparer les produits utiles des réactions nucléaires, les concentrer et les cristalliser avant que disparaisse l'inversion de population. On peut aussi combiner les irradiations du cristal par des faisceaux de neutrons et de rayons gamma, etc.

Un cristal contenant des noyaux de Mössbauer doit être refroidi jusqu'à une température aussi basse que possible afin que la raie d'émission soit fine. On suppose généralement que le cristal doit avoir une forme aciculaire, son volume doit être de 10^{-7} à 10^{-9} cm^3 selon la longueur d'onde désirée et la densité des états excités de 10^{17} à 10^{19} cm^{-3}. La densité d'énergie emmagasinée par ces états atteint des valeurs extrêmement grandes s'élevant à des centaines et des milliers de joules par centimètre cube. On conçoit que l'apport d'énergie de pompage doit être sensiblement plus important. Il en découle un régime de fonctionnement à caractère explosif et donc unique, ce qui met en relief toutes les difficultés de sa réalisation.

Différents schémas de création de lasers à rayons gamma ont été suggérés ; il existe beaucoup de travaux théoriques relatifs aux régimes de fonctionnement hypothétiques de ces lasers, où on a mis en évidence nombre de contradictions, de difficultés techniques et technologiques et on a suggéré des méthodes permettant de les surmonter. Mais il n'existe aucune communication concernant des résultats de recherches expérimentales qui témoignerait d'une avancée dans ce domaine.

Les domaines d'application de rayonnements monochromatiques ayant des longueurs d'onde comparables ou même inférieures aux dimensions atomiques seraient pratiquement illimités, que ce soit dans la recherche fondamentale qu'en technique ; la recherche des voies menant à l'élaboration de lasers à rayons gamma se poursuit activement.

En guise de conclusion il convient de remarquer que quoique l'électronique quantique a pour objet l'étude, l'élaboration et la fabrication industriel-

le de lasers, son contenu dépasse le cadre des fondements de la physique des lasers ou des lasers eux-mêmes. L'électronique quantique ayant créé la possibilité de produire d'extraordinaires densités d'énergie de rayonnement, concentrées dans l'espace, le temps et un intervalle spectral donné dans l'infrarouge, le spectre visible et l'ultraviolet provoqua la création et le développement de nouvelles branches des sciences et des techniques assez importantes pour qu'un cours spécial soit consacré à chacune d'elles.

Enumérons quelques-unes de ces nouvelles disciplines.

En optique non linéaire, dont il a été déjà question, on procède à l'étude des méthodes de génération d'harmoniques et de fréquences différentielles, à l'élaboration d'amplificateurs et de générateurs paramétriques de lumière, à l'étude des diffusions stimulées de la lumière, on met en pratique l'inversion du front d'onde et l'on étudie les possibilités de réalisation pratique de systèmes adaptatifs d'optique non linéaire. En optique non linéaire on accorde beaucoup d'importance à l'étude des variations des propriétés optiques du milieu, déterminées par la propagation d'une lumière de forte intensité, notamment de la variation des conditions de propagation conduisant, par exemple, à l'effet d'autofocalisation de la lumière.

En spectroscopie non linéaire on étudie des processus cohérents, tels l'écho photonique et les nutations lumineuses et leurs applications en spectroscopie, on y procède à des recherches concernant la spectroscopie à la saturation, la spectroscopie « Doppler-free », la stabilisation de la fréquence d'émission laser, les applications de la diffusion anti-Stokes cohérente de la lumière, les processus de l'absorption multiphotonique de la lumière, l'ionisation multiphotonique des atomes et la dissociation multiphotonique des molécules.

La spectroscopie non linéaire impose des recherches sur les processus d'interaction de résonance du rayonnement laser de grande intensité avec la matière, qui ont pour débouchés la séparation des isotopes, le contrôle des réactions chimiques, y compris les réactions biochimiques, la possibilité de détection d'atomes et de molécules isolés.

Parmi les processus d'interaction hors résonance de puissants rayonnements lasers avec la matière, on citera le claquage optique des gaz, l'échauffement du plasma disruptif, la vaporisation des métaux, la coupe, le soudage et la trempe des métaux, les générateurs lasers du son, la thermochimie, la destruction des diélectriques transparents, etc. On étudie les potentialités des lasers pour la création de plasmas haute température pour la fusion thermonucléaire contrôlée.

En holographie, en optique intégrée et en télécommunications par fibres de verre, qui s'appuient toutes sur l'électronique quantique, l'utilisation des lasers ouvre des possibilités nouvelles de transmission, de traitement et de mémorisation de l'information.

Il faut citer aussi les applications des lasers à la biophysique, à la biochimie et à la médecine.

Dans nombre d'applications l'efficacité est déterminée en premier lieu par la forte concentration d'énergie dans un intervalle de temps donné à l'emplacement précis de l'interaction. Ce type d'action puissante peut avoir une multitude d'applications et la principale caractéristique de l'émission laser utilisée dans ces cas est sa haute cohérence spatiale et partant sa haute directivité.

La possibilité d'exercer par le rayonnement laser une intense action de résonance sur la matière, irréalisable par les autres méthodes d'action telles que le bombardement électronique, le flux de plasma, les explosions, etc., résulte de la monochromaticité des émissions lasers. C'est précisément lors des interactions de résonance que se trouve directement utilisé l'ensemble des propriétés du rayonnement laser.

C'est ainsi que la monochromaticité et l'accordabilité de l'émission laser ont permis de perfectionner la spectroscopie en élevant la sensibilité, le pouvoir de résolution et en rendant possible le fonctionnement à distance et à grande vitesse des spectromètres à laser. Dans ce domaine ce sont les lasers à colorants, à centres F et à semiconducteurs qui ont trouvé une large application.

Comme le rayonnement laser est non seulement monochromatique mais possède également une grande intensité, on a pu fonder la spectroscopie non linéaire à laser. Un exemple en est la diffusion anti-Stokes cohérente de la lumière.

Lorsqu'on fait tomber deux rayonnements monochromatiques de fréquences différentes (pompage biharmonique) sur une substance susceptible d'effet Raman, les vibrations moléculaires sont fortement amplifiées si la différence de fréquence des rayonnements de pompage est égale à la fréquence de ces vibrations. Dans l'espace d'interaction, en supplément aux ondes lumineuses, il s'établit une onde progressive des vibrations moléculaires excitées de façon cohérente. Comme la présence de molécules excitées fait varier l'indice de réfraction du milieu contenant ces molécules, à l'onde progressive de l'excitation des molécules correspond une onde progressive des variations de l'indice de réfraction du milieu. Cela équivaut à un réseau de diffraction de phase progressif. On sait qu'un réseau de diffraction jouit de propriétés de résonance et diffuse de façon cohérente la lumière incidente, les radiations de différentes longueurs d'onde étant déviées dans des directions déterminées. En conséquence les conditions de synchronisme du rayonnement de pompage et du rayonnement diffusé sont vérifiées sur une grande longueur d'interaction lorsque la fréquence de la lumière diffusée est décalée de la fréquence des vibrations moléculaires. Pour une lumière de cette fréquence, il se produit une accumulation de l'effet et le réseau

de diffraction progressif, autrement dit l'onde progressive de modulation à la fréquence des vibrations moléculaires, réalise la transformation du rayonnement laser initial de pompage biharmonique en un rayonnement déplacé en fréquence dans le sens du décalage de Stokes et anti-Stokes. C'est le rayonnement anti-Stokes de plus courte longueur d'onde qui est le plus utile parce qu'il permet d'étudier les états excités des molécules, les processus évoluant à haute température, les milieux lumineux, le plasma, etc.

Si l'on fixe la fréquence de l'un des rayonnements de pompage biharmonique, tout en accordant la fréquence de l'autre rayonnement de façon que la différence de ces deux fréquences varie de façon continue et contrôlée dans un intervalle spectral donné, on pourra explorer cet intervalle d'après la variation spectrale de l'intensité de l'effet de diffusion anti-Stokes cohérente de la lumière. Le pouvoir de séparation d'un spectromètre fondé sur cet effet dépend de la largeur des raies d'émission des lasers utilisés et représente actuellement près de 30 MHz (10^{-3} cm^{-1}). La forte dépendance non linéaire du signal de ce type de spectromètre avec l'intensité de pompage fait que pour une focalisation forte du pompage le rayonnement diffusé est émis par une région de petite étendue. De ce fait le pouvoir de résolution spatiale de ces spectromètres atteint quelques micromètres.

Dans l'interaction de résonance d'un rayonnement laser intense avec la matière l'effet de saturation joue un rôle important. Par exemple, par suite de la saturation de la composante homogène d'une raie élargie de façon non homogène par effet Doppler, cette dernière comporte une crevasse étroite. Cet effet a été mis à profit pour concevoir la spectroscopie non linéaire Doppler-free dont le pouvoir de résolution pour les gaz à basse pression peut atteindre 10^4 à 10^6 Hz.

Les interactions de résonance de forte intensité ne se limitent pas à la spectroscopie à haut pouvoir de résolution, y compris la spectroscopie non linéaire à laser. La grande luminance spectrale des émissions monochromatiques lasers peut donner lieu à une évolution sélective des processus d'interaction du rayonnement de résonance avec la matière.

Dans les études spectroscopiques on admet que la lumière n'exerce aucun effet irréversible sur le milieu. En spectroscopie laser le rayonnement laser ne provoque ni la destruction ni une perturbation notable du milieu étudié. Mais en raison de la possibilité d'obtenir une forte concentration d'énergie, les émissions lasers peuvent exercer des actions qui modifient à une échelle macroscopique l'état de l'objet étudié. Ces modifications sont très variées, ce peuvent être des variations des coordonnées et des vitesses des particules des substances irradiées, des modifications de leur structure, des transformations de phase, la précipitation de certains composants, etc. Lorsque des modifications de ces types sont provoquées par un rayonne-

ment laser monochromatique et lorsque les résultats de ces actions dépendent de la gamme spectrale, on peut affirmer qu'il s'agit d'une interaction de résonance entre le rayonnement laser et la matière. Cette interaction sera intense si la redistribution des populations déterminée par l'absorption résonnante du rayonnement est suffisamment notable pour se manifester, à l'échelle macroscopique, par une variation des propriétés ou du comportement du système considéré.

Il convient d'indiquer qu'une excitation résonnante d'une part notable des particules composant la substance irradiée met celle-ci dans un état hors d'équilibre. Les processus de relaxation tendent à ramener le système à son état d'équilibre. Mais comme ils déterminent finalement un échauffement de la substance, ils empêchent l'action sélective du rayonnement. Le problème majeur des recherches et des applications des interactions de résonance de forte intensité consiste à déterminer les conditions dans lesquelles peut s'exercer une action de résonance sélective et à rechercher les moyens propres à assurer ces conditions.

L'idée générale de réalisation des processus sélectifs consiste à les diviser en deux étapes au moins. La première étape comporte l'excitation résonnante d'un nombre notable de microparticules, cette excitation pouvant être assez facilement rendue sélective. La deuxième étape doit conduire à une variation irréversible des propriétés physiques des particules qui ont été sélectivement excitées, ce qui donne lieu à une fixation de l'excitation. Comme la perte de sélectivité se produit au cours de cette étape, c'est celle-ci qui fait l'objet d'études poussées. Dans des processus sélectifs comme la séparation des isotopes par rayonnement laser, l'épuration des gaz par rayonnement laser, la photochimie par laser, on utilise surtout l'ionisation et la dissociation en deux (ou plusieurs) étapes successives, la deuxième étape conduisant à la séparation physique ou à la fixation chimique des fragments des atomes ou des molécules sélectionnés qui se forment sous l'action d'une intense irradiation laser. On peut réaliser aussi un contrôle sélectif par rayonnement laser des processus évoluant à la surface de séparation de substances se trouvant dans des états de phase nettement différents.

La forte intensité de l'émission laser fait qu'on ne peut pas toujours étudier l'interaction de l'émission avec la matière en première approximation de la théorie des perturbations. Dans le cas où l'énergie d'interaction du champ du rayonnement avec l'atome ou la molécule est comparable à l'énergie interne caractéristique de ces particules, ou bien si la transition entre états correspond à l'absorption de plusieurs quanta, il faut tenir compte des processus dits multiphotoniques, qui donnent lieu à une absorption (émission) synchrone de plusieurs photons. L'énergie totale de ces photons est égale à l'énergie de la transition. Les processus multiphotoniques permettent d'étendre notablement les possibilités d'une action résonante effective sur la matière.

Le développement ultérieur de l'électronique quantique, l'élaboration de nouveaux lasers, l'extension de la gamme des longueurs d'onde d'émission laser et des gammes d'accord continu de la fréquence dans l'infrarouge, dans le spectre visible et dans l'ultraviolet permettraient d'étendre grandement les domaines d'application des lasers et d'accroître leur efficacité.

* * *

Rappelons pour mémoire quelques formules approchées des fréquences d'émission et des énergies des quanta de plusieurs lasers et donnons quelques évaluations numériques résultant de l'application de ces formules (voir tableau ci-dessous) :

$$\nu = \frac{3}{\lambda} \cdot 10^{14}\ \mathrm{Hz}, \quad \frac{\nu}{c} = \frac{10}{\lambda} \cdot 10^{3}\ \mathrm{cm}^{-1},$$

$$h\nu = \frac{1{,}986}{\lambda} \cdot 10^{-12}\ \mathrm{erg} = \frac{1{,}986}{\lambda} \cdot 10^{-19}\ \mathrm{J} = \frac{5{,}52}{\lambda} \cdot 10^{-24}\ \mathrm{kW \cdot h},$$

$$N_A h\nu = \frac{28{,}5}{\lambda}\ \mathrm{kcal/mole}, \quad \frac{h\nu}{k} = \frac{14{,}3}{\lambda} \cdot 10^{3}\ \mathrm{K},$$

$$h\nu = \frac{1{,}24}{\lambda}\ \mathrm{eV}.$$

Dans ces formules λ est la longueur d'onde en micromètres, $c = 2{,}997925 \cdot 10^{10}$ cm/s la vitesse de la lumière, $h = 6{,}626176 \cdot 10^{-34}$ J/Hz la constante de Planck, $N_A = 6{,}022094 \cdot 10^{23}\ \mathrm{mole}^{-1}$ la constante d'Avogadro, $k = 1{,}380662 \cdot 10^{-23}$ J/K la constante de Boltzmann. Les facteurs de conversion des unités sont :

$$1\ \mathrm{cal} = 4{,}1868\ \mathrm{J}, \quad 1\ \mathrm{eV} = 1{,}60219 \cdot 10^{-19}\ \mathrm{J}.$$

Longueurs d'onde, fréquences d'émission et énergies des quanta de quelques lasers

Laser	λ, μm	ν, 10^{14} Hz	ν/c, 10^3 cm^{-1}	$h\nu$, 10^{-12} erg	$h\nu$, 10^{-19} J	$h\nu$, 10^{-24} kWh	$N_A h\nu$, kcal/mole	$h\nu/k$, 10^3 K	$h\nu$, eV
à He-Ne	0,633 1,15 3,39	4,74 2,61 0,885	15,8 8,7 2,95	3,14 1,73 0,586	3,14 1,73 0,586	8,72 4,8 1,63	45 24,8 8,4	22,6 12,4 4,22	1,96 1,08 0,366
à l'argon	0,488 0,5145	6,15 5,83	20,5 19,4	4,06 3,86	4,06 3,86	11,3 10,7	58,4 55,4	29,3 27,8	2,54 2,41
à He-Cd	0,325 0,4416	9,23 6,79	30,8 22,6	6,11 4,50	6,11 4,50	17 12,5	87,7 64,5	44 32,4	3,82 2,81
à cuivre	0,510 0,578	5,88 5,19	19,6 17,3	3,89 3,44	3,89 3,44	10,8 9,55	55,9 49,3	28 24,7	2,43 2,15
à CO_2	9,6 10,6	0,312 0,283	1,04 0,943	0,207 0,187	0,207 0,187	0,575 0,521	2,97 2,7	1,49 1,35	0,129 0,117
à HF	2,7	1,11	3,7	0,74	0,74	2,04	10,5	5,3	0,46
à l'iode	1,315	2,28	7,60	1,51	1,51	4,20	21,7	10,9	0,943

à CO	5,5	0,545	1,82	0,36	0,36	1,00	5,18	2,6	0,225
à l'azote	0,3371	8,90	29,7	5,89	5,89	16,4	84,5	42,4	3,68
à KrCl	0,222	13,5	45,0	8,95	8,95	24,9	128	64,4	5,59
à KrF	0,249	12,0	40,2	7,96	7,96	22,2	114	57,4	4,98
à XeCl	0,308	9,74	32,5	6,45	6,45	17,9	92,5	46,4	4,03
à XeF	0,352	8,52	28,4	5,64	5,64	15,7	81	40,6	3,52
à rubis	0,693	4,33	14,4	2,87	2,87	7,97	41	20,6	1,79
à néodyme	1,06	2,83	9,43	1,87	1,87	5,21	27	13,5	1,17
à l'erbium	2,94	1,02	3,40	0,675	0,675	1,88	9,69	4,86	0,422
à rhodamine	0,6	5,0	16,7	3,31	3,31	9,2	47,5	23,8	2,07
à LiF-F_2^+	1,0	3,0	10,0	1,986	1,986	5,52	28,5	14,3	1,24
à LiF-F_2^-	1,2	2,5	8,33	1,66	1,66	4,6	23,7	11,9	1,03
à GaAs	0,84	3,57	11,3	2,36	2,36	6,57	33,9	17,0	1,48

INDEX DES NOMS

INDEX DES MATIÈRES

Semiconducteur direct 279
Sensibilisation de la luminescence 250
Spectres rotatoires des molécules 164
— vibratoires des molécules 162
Spectroscopie non linéaire 335
Stabilité du résonateur 86

TABLE DES MATIÈRES

Deuxième partie
LES LASERS

A nos lecteurs

Les Editions Mir vous seraient très reconnaissantes de bien vouloir leur communiquer votre opinion sur le contenu de ce livre, sa traduction et sa présentation, ainsi que toute autre suggestion.

Notre adresse :
Editions Mir,
1er Rijski péréoulok, 2
Moscou, I-110, GSP, U.R.S.S.